



# Alliage antiferromagnétique MnPt : croissance, propriétés magnétiques et structurales

Jérôme Borme

## ► To cite this version:

Jérôme Borme. Alliage antiferromagnétique MnPt : croissance, propriétés magnétiques et structurales. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2006. Français. NNT : . tel-00159060

**HAL Id: tel-00159060**

**<https://theses.hal.science/tel-00159060>**

Submitted on 2 Jul 2007

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Thèse

présentée par Jérôme Borme  
pour obtenir le grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ  
JOSEPH FOURIER  
en les sciences physiques.

(Arrêté ministériel du 30 mars 1992.)

## Alliage antiferromagnétique MnPt : croissance, propriétés magnétiques et structurales

Soutenue publiquement le lundi 30 octobre 2006  
devant la commission d'examen composée de

Madame	Pascale Bayle-Guillemaud,	
Monsieur	Olivier Fruchart,	
Monsieur	Dominique Givord,	
Madame	Véronique Pierron-Bohnes,	rapporteur,
Monsieur	Yves Samson,	directeur de thèse,
Monsieur	Étienne Snoeck,	rapporteur.

Thèse préparée au Département de recherche fondamentale sur la  
matière condensée du Commissariat à l'énergie atomique de Grenoble.

Cette brochure est distribuée dans les conditions du contrat *Creative Commons – paternité, partage des conditions initiales à l'identique, version 2 France*. En plus des droits prévus par la loi, ce contrat autorise la distribution du texte et des illustrations, de façon partielle ou intégrale, à l'identique ou en version dérivée, à titre gracieux ou onéreux, sous réserve de mentionner le nom de l'auteur d'origine et de distribuer le document résultant selon les termes du même contrat. Le texte complet du contrat peut être consulté à l'adresse <http://creativecommons.org/licenses/by-sa/2.0/fr/legalcode>.



# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>7</b>
<b>Introduction</b>	<b>9</b>
<b>1 Considérations générales</b>	<b>11</b>
1.1 L'anisotropie d'échange . . . . .	11
1.1.1 Aspects phénoménologiques . . . . .	11
1.1.2 Moyens de mesure . . . . .	19
1.2 L'alliage MnPt . . . . .	21
1.2.1 Propriétés générales . . . . .	21
1.3 Applications de MnPt . . . . .	24
1.4 L'ordre chimique . . . . .	28
1.5 Conditions de travail . . . . .	29
<b>2 Système à variants planaires</b>	<b>31</b>
2.1 Structure . . . . .	31
2.1.1 État de l'art . . . . .	31
2.1.2 Méthode de croissance . . . . .	32
2.1.3 Croissance . . . . .	32
2.1.4 Défauts de croissance dans l'alliage MnPt . . . . .	43
2.1.5 Parois d'antiphase . . . . .	44
2.1.6 Croissance du fer . . . . .	44
2.1.7 Population de variants . . . . .	46
2.1.8 Diffraction des rayons x et paramètres de maille . . . . .	51
2.1.9 Température et ordre chimique . . . . .	51
2.1.10 En résumé . . . . .	55
2.2 Propriétés magnétiques . . . . .	55
2.2.1 Aspect des cycles d'hystérésis . . . . .	57
2.2.2 Mesures du couplage d'échange . . . . .	58
2.2.3 Comparaison avec des bicouches FeNi/MnPt . . . . .	59
2.2.4 Modes de renversements d'aimantation . . . . .	67
2.2.5 Fluctuations . . . . .	74
2.3 Simulation numérique . . . . .	83
2.3.1 Modélisation des retournements . . . . .	83
2.3.2 Représentation adoptée . . . . .	87
2.3.3 Étude de retournements typiques . . . . .	88

2.3.4	Propriétés du champ de décalage . . . . .	92
2.3.5	Autres énergies pouvant être considérées . . . . .	95
2.3.6	Anisotropie induite . . . . .	97
2.3.7	Cas du permalloy . . . . .	97
2.3.8	Conclusion . . . . .	100
<b>3</b>	<b>Système à anisotropie perpendiculaire</b>	<b>101</b>
3.1	Introduction . . . . .	101
3.2	Croissance et structure . . . . .	102
3.2.1	Élaboration . . . . .	102
3.2.2	Effet de la température du substrat . . . . .	103
3.2.3	Croissance et ordre chimique . . . . .	105
3.2.4	Quantification de l'ordre chimique . . . . .	106
3.3	Recuits . . . . .	110
3.4	Irradiation . . . . .	111
3.4.1	Échantillon de FePd . . . . .	111
3.4.2	Échantillon de MnPt . . . . .	112
3.4.3	Conclusion . . . . .	114
<b>4</b>	<b>Étude de la structure magnétique de MnPt</b>	<b>115</b>
4.1	Introduction . . . . .	115
4.2	Dispositif instrumental . . . . .	115
4.3	MnPt planaire . . . . .	116
4.4	MnPt perpendiculaire . . . . .	119
4.4.1	Évolution de la maille cristalline . . . . .	120
4.4.2	Largeur des domaines . . . . .	120
4.4.3	Variants dans le plan . . . . .	122
4.4.4	Intensité du signal . . . . .	122
4.4.5	Structure de l'échantillon . . . . .	125
4.5	Conclusion . . . . .	128
	<b>Conclusion</b>	<b>129</b>
<b>A</b>	<b>Techniques expérimentales</b>	<b>133</b>
A.1	Élaboration des échantillons . . . . .	133
A.2	Nature et préparation des échantillons . . . . .	134
A.3	Diffraction des rayons x . . . . .	135
A.4	Recuit sous champ . . . . .	136
A.5	Irradiation . . . . .	137
<b>B</b>	<b>Paramètre d'ordre</b>	<b>139</b>
B.1	Intensité issue d'une diffraction des rayons x . . . . .	139
B.1.1	facteur de structure . . . . .	139
B.1.2	Corrections géométriques . . . . .	139
B.1.3	Correction d'ouverture arrière . . . . .	140
B.1.4	Facteur d'absorption . . . . .	142
B.1.5	Évolution de l'intensité en fonction des réflexions . . . . .	143

B.1.6 Mélange de pics . . . . .	144
B.2 Paramètre d'ordre . . . . .	145
B.3 Cas des couches à axe $c$ planaire . . . . .	145
B.4 Cas des couches à axe $c$ perpendiculaire . . . . .	146
<b>C Conventions</b>	<b>147</b>
<b>Table des figures</b>	<b>149</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>153</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>155</b>



# Remerciements

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Yves Samson qui a dirigé ce travail, ainsi qu'aux membres du jury, en particulier Véronique Pierron-Bohnes et Étienne Snoeck, qui ont accepté d'en être les rapporteurs. J'adresse également mes plus vifs remerciements à Pascale Bayle-Guillemaud qui a participé très activement à ce travail par sa dextérité impressionnante face aux microscopes et par son aide précieuse à l'interprétation des résultats de microscopie. Je remercie également Olivier Fruchart et Dominique Givord pour leur participation au jury de thèse.

Les résultats de ce travail sont le résultat d'une collaboration avec le Laboratoire de physique des solides de l'Université d'Orsay, et notamment avec Alexandra Mougin sans qui une grande part de ce travail n'aurait pas été possible. Jacques Ferré, Jean-Pierre Jamet sont également à remercier pour leur aide en ce qui concerne les mesures magnéto-optiques. Merci à Robert Stamps de l'*University of Western Australia*, pour avoir mis au point le programme de simulation numérique qui a facilité l'interprétation des résultats. Bernard et Martine Hennion ont également été d'une grande aide pour les mesures de neutrons effectuées au laboratoire commun CEA-CNRS Léon Brillouin.

Je suis également très reconnaissant envers Alain Marty pour sa grande disponibilité. Son aide et ses conseils quotidiens ont été indispensable à toutes les étapes de ce travail de thèse.

Un grand merci également à Cyrille Beigné qui a apporté une aide irremplaçable, plus particulièrement en ce qui concerne les dépôts par épitaxie, les mesures de microscopie en champ proche, la mise en place et l'utilisation du dispositif d'irradiation et, avec Matthieu Jamet, pour les mesures magnéto-optiques effectuées au laboratoire.

J'adresse mes remerciements à Rémi Frossard, Bernard Mongellaz, Jean-Christophe Pillet et Violaine Salvador, pour leur aide efficace au quotidien. Je remercie aussi Jean-Luc Rouvière, Aurore Rudolf et Jany Thibaud pour m'avoir chaleureusement accueilli et aidé pour les observations de microscopie.

Je tiens à souligner les fructueuses discussions et l'aide qu'ont pu m'apporter les chercheurs permanents du laboratoire, Ariel Brenac, Robert Morel, Patrick Warin, et ceux des laboratoires voisins, Thierry Deutsch, Bruno Gilles, Pascal Hecquet, Denis Jalabert, Frédéric Lançon, Jacques Pécaut, Pascal Pochet, Isabelle Schuster.

Merci également aux collègues sans qui l'ambiance au laboratoire n'aurait pas été la même, Jean-Philippe Attané, Guillaume Beutier, Damien Caliste, Claire Chauvin, Michaël Delalande, Anthony Meunier, Pierre de Person, Céline Portemont.

L'auteur remercie enfin <http://www.nanotec.es> pour le logiciel WSXM.

Lisbonne, le jeudi 26 octobre 2006





# Introduction

Ce mémoire est consacré à l'étude de l'anisotropie d'échange dans des systèmes couplés, dans le cas où le couplage se fait entre une couche ferromagnétique et une couche antiferromagnétique. Cette étude se place dans un contexte applicatif où la demande croissante de dispositifs miniaturisés conduit à des contraintes spécifiques :

- D'une part, l'utilisation des matériaux présentant des anisotropies magnétiques importantes, qui permettent de stocker des informations dans des volumes élémentaires de données (*bits*) plus petits. Une possibilité pour augmenter la densité de l'enregistrement magnétique consiste à utiliser des matériaux à anisotropie perpendiculaire, solution mise en place industriellement depuis le début de l'année 2005.
- D'autre part, la miniaturisation exige la mise au point de méthodes appropriées de fabrication. À cet égard, la possibilité de nanofabrication à l'aide d'un pinceau d'ions légers est une méthode récemment proposée. Cette méthode permet de modifier la structure des multicouches, en ce qui concerne l'ordre chimique, la rugosité des interfaces, et permet de contrôler localement les propriétés magnétiques.

Cependant, si le choix de MnPt est encouragé par la perspective de son intégration dans des dispositifs industriels, les problèmes qui sont abordés ici sont de nature fondamentale. En effet, l'alliage MnPt présente des propriétés, liées notamment à l'influence de l'ordre chimique, qui permettent d'étudier la relation de la structure au magnétisme. D'autre part, les couches métalliques obtenues au laboratoire sous forme bivariée permettent d'étudier un système dont la complexité permet de faire émerger des propriétés particulières de l'anisotropie d'échange. Grâce à une élaboration au laboratoire des matériaux sous forme épitaxiée, cette étude sera menée sur des systèmes modèles adaptés à la compréhension des phénomènes physiques.

**Plan du manuscrit** Dans cette étude, nous nous sommes intéressés à des systèmes particuliers, MnPt/Fe et MnPt/FeNi. Le choix de MnPt repose en effet sur les possibilités qu'offrent sa mise en ordre chimique et sa structure cristalline. À l'aide d'une technique d'épitaxie par jets atomiques, nous avons réalisé des couches de MnPt dans plusieurs états d'ordre chimique, et présentant une structure multivariée ou monovariée. Nous avons étudié ces couches à l'aide d'expériences mais aussi à l'aide de simulations numériques. Dans l'exposé suivant, après un rappel des principes de l'anisotropie d'échange et des propriétés générales de l'alliage utilisé, nous étudierons les systèmes à anisotropie planaire puis les systèmes à anisotropie perpendiculaire. Enfin, nous présenterons les résultats d'une étude de la structure magnétique de l'alliage MnPt.



# 1

## Considérations générales

Avant de présenter les résultats expérimentaux obtenus dans ce travail, il est important de bien comprendre l'anisotropie d'échange. À cette fin, nous en rappellerons les propriétés générales. Nous présenterons également les résultats obtenus dans la littérature concernant l'alliage MnPt, que ce soit au niveau fondamental ou dans les applications.

### 1.1 L'anisotropie d'échange

Si la découverte du ferromagnétisme remonte à plusieurs milliers d'années, celle de l'antiferromagnétisme [1] est en revanche beaucoup plus récente. L'antiferromagnétisme s'observe en effet difficilement en raison de l'absence de moment magnétique macroscopique. L'anisotropie d'échange [2] quant à elle, résulte de l'interaction d'interface entre un matériau ferromagnétique et un matériau antiferromagnétique. Elle se caractérise dans sa manifestation la plus spectaculaire par un décalage en champ du cycle d'hystérésis de la couche ferromagnétique.

#### 1.1.1 Aspects phénoménologiques

La physique microscopique de l'anisotropie d'échange n'est pas différente de celle des autres phénomènes du magnétisme. Cependant, aucun modèle n'a pour l'instant permis de rendre compte de l'ensemble des observations expérimentales qui lui sont attribuées.

La difficulté particulière de l'étude du couplage d'échange réside dans sa nature interfaciale. Les phénomènes d'interface sont difficiles à mesurer expérimentalement notamment parce que le volume de matière concerné est faible, ainsi que le signal de mesure qui en résulte. D'autre part, le contrôle de la qualité des interfaces est primordial dans l'étude de l'anisotropie d'échange. Or ces outils n'étaient pas disponibles à l'époque de la découverte de Meiklejohn et Bean. Ce n'est qu'à la fin des années 1960 que les chambres d'épitaxie par jets moléculaires, d'invention récente, ont été équipées des instruments permettant de suivre *in-situ* de la croissance et de déterminer la nature des impuretés : spectromètre de masse, spectromètre Auger, dispositif de diffraction électronique en réflexion [3].

#### Anisotropie d'échange et décalage de cycle

Une image simple de l'anisotropie d'échange a été donnée par ses découvreurs. Considérons une bicouche composée d'une couche antiferromagnétique de température de Néel  $T_N$  et d'une

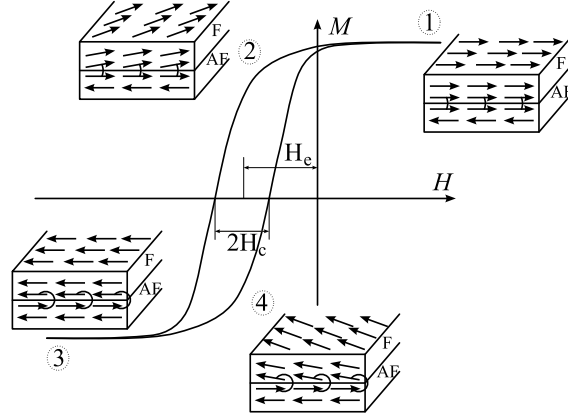


FIG. 1.1 – Illustration intuitive d'un cycle d'hystérésis effectué sur une bicouche couplée. Le ferromagnétique est noté F, l'antiferromagnétique AF.  $H_c$  est le champ coercitif,  $H_e$  le champ de décalage,  $H$  le champ appliqué et  $M$  l'aimantation du matériau.

couche ferromagnétique de température de Curie  $T_C$ , placée à une température supérieure à  $T_N$  et inférieure à  $T_C$  et baignant dans un champ magnétique. L'aimantation de la couche ferromagnétique, couplée au champ extérieur, s'oriente parallèlement à ce dernier. Le couplage entre les moments du ferromagnétique et de l'antiferromagnétique situés à l'interface tend à orienter les moments antiferromagnétiques. Le système est alors refroidi. Lorsque la température devient inférieure à  $T_N$ , les moments de l'antiferromagnétique demeurent figés, et une aimantation surfacique nette se maintient sur le plan d'interface entre l'antiferromagnétique et le ferromagnétique.

Les effets de l'anisotropie d'échange sont dès lors visibles sur un cycle d'hystérésis effectué à une température inférieure à  $T_N$ , le champ appliqué étant maintenu parallèle à la direction qu'il avait lors de la procédure de recuit sous champ. La couche antiferromagnétique, en raison de son absence de moment macroscopique, n'est pas affectée par les champs extérieurs accessibles en pratique, de l'ordre de quelques Teslas (il faudrait un champ de l'ordre de 400 T pour obtenir un effet significatif [4]).

Le phénomène couplage d'échange étudié ici est lié au couplage des moments à l'interface entre un ferromagnétique et un antiferromagnétique. Si la couche d'interface de l'antiferromagnétique présente une aimantation nette, le couplage entre les deux couches aura tendance à favoriser l'orientation de la couche d'interface du ferromagnétique dans la direction de cette aimantation nette. Ce couplage peut être modélisé par un champ effectif subi par la couche d'interface du ferromagnétique. Ce champ effectif conduit à un décalage du cycle d'hystérésis sur l'axe des champs (figure 1.1).

Plusieurs phénomènes contribuent à complexifier la situation. Des défauts structuraux peuvent modifier considérablement les propriétés locales de l'aimantation (figure 1.2). D'une part, la couche peut ne pas être antiferromagnétique dans tout son volume. C'est le cas des alliages chimiquement ordonnés tels que MnPt, lorsque le matériau élaboré ne présente pas un ordre chimique homogène. D'autre part, des impuretés non magnétiques ou des défauts peuvent modifier localement la structure magnétique, remettant en cause la possibilité du couplage ou de l'orientation des moments d'interface dans la direction adéquate. De plus, l'antiferromagnétique peut ne pas avoir une structure magnétique permettant le couplage d'échange. En effet, des simulations numériques ont montré que dans le cas de certains alliages

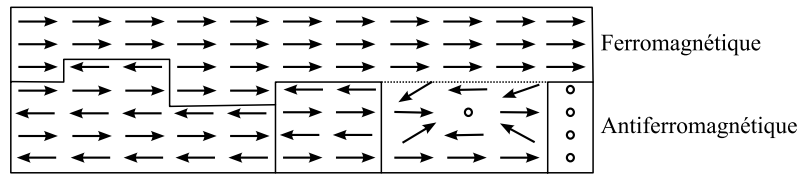


FIG. 1.2 – Illustration de quelques types de défauts pouvant modifier le couplage (de gauche à droite) : rugosité d'interface, parois d'antiphase, présence d'impuretés, interdiffusion, désordre chimique conduisant à une zone non magnétique.

antiferromagnétiques, seules certaines structures magnétiques peuvent conduire à un champ de décalage [5, 6]. Une interdiffusion peut avoir altéré les matériaux, soit lors de l'élaboration du système, soit lors du recuit suivi du refroidissement sous champ. Cette interdiffusion modifie la structure magnétique et peut selon les conditions annuler le champ de décalage ou provoquer son apparition [7]. Dans la description initiale donnée plus haut, la rugosité à l'interface était implicitement supposée nulle. En pratique, l'interface présentera vraisemblablement des marches atomiques. Dans le cadre des hypothèses de l'exemple donné plus haut, cela conduit à un couplage de la couche ferromagnétique avec des plans de l'antiferromagnétique présentant une aimantation opposée. L'effet macroscopique de décalage de cycle est alors théoriquement réduit, sinon annulé. Compte-tenu de ces possibilités de défauts, il est ainsi possible que, malgré la procédure de refroidissement sous champ, des îlots antiferromagnétiques soient orientés dans une direction différente de celle du champ appliqué lors de la procédure de recuit et refroidissement sous champ, l'effet de l'anisotropie d'échange étant alors plus difficile à observer.

### Relation entre les champs coercitif et d'échange

L'interaction d'échange ne se caractérise pas seulement par un décalage du cycle d'hystérésis. Elle s'accompagne également d'une augmentation du champ coercitif. Les explications qui ont été proposées à ce phénomène sont multiples. Considérons une dispersion d'orientation des spins de l'antiferromagnétique à l'interface. Le couplage entre les deux couches rend plus difficile le renversement de l'aimantation, dans le sens croissant comme dans le sens décroissant du champ. Ce raisonnement est valable même en l'absence d'une procédure de refroidissement sous champ, donc de décalage du cycle. Cependant, dans le cas où il existe un décalage du cycle, certains auteurs ont montré une corrélation entre champs coercitif et d'échange. Un auteur fait remarquer que cette corrélation n'existe que dans le cas de structures épitaxiées, du moins dans la cas d'une étude où ces grandeurs étaient étudiées en fonction de la température du recuit sous champ [8]. Plusieurs explications ont été avancées pour expliquer la corrélation entre ces deux grandeurs, notamment à l'occasion d'études portant sur la rugosité d'interface.

Le champ coercitif dépend en effet de la rugosité de l'interface entre l'antiferromagnétique et le ferromagnétique car cette rugosité confère à la distribution de spins d'interface une plus grande dispersion en même temps qu'une plus grande surface de contact [9]. Le décalage de cycle lui aussi est très influencé par la rugosité de l'interface. En effet, une marche atomique sur une surface non-compensée peut conduire à avoir à l'interface un plan d'aimantation opposée à la précédente. Au niveau macroscopique, l'aimantation surfacique moyenne de l'antiferromagnétique est ainsi diminuée voire annulée, diminuant ou annulant corrélativement le décalage du cycle. Cependant la rugosité d'interface n'est pas le seul paramètre qui influence

les champs coercitif et d'échange. Même dans le cas d'interfaces particulièrement lisses l'interaction d'échange conduit à une augmentation du champ coercitif. Cela a ainsi été observé dans le cas de fluorides préparés par épitaxie [10]. Cela montre ainsi le rôle prépondérant joué par la configuration de spins à l'interface.

L'effet de l'épaisseur de la couche ferromagnétique est la plus simplement décrite. L'interaction d'échange étant essentiellement interfaciale, le champ de décalage évoluera comme l'inverse de l'épaisseur de la couche ferromagnétique. La valeur du décalage du cycle augmente ainsi lorsque l'épaisseur du ferromagnétique diminue. Cependant, pour les plus faibles épaisseurs de ferromagnétique, une décroissance du champ de décalage a été observée dans certains systèmes [7, 11]. Enfin, la structure de spin à l'intérieur du ferromagnétique est encore discutée. Certains auteurs apportent des arguments pour exclure une structure hélicoïdale ([12] et ses références 12 et 13), quand d'autres étudient leur existence [13].

L'effet de l'épaisseur de la couche antiferromagnétique est plus difficile à expliquer. Il a mis en jeu des efforts de compréhension de leur structure magnétique qui se sont révélés particulièrement fructueux. Certains ont attribué l'accroissement du champ coercitif à une perte d'énergie dans l'antiferromagnétique [14, 15]. D'autres ont souligné la corrélation entre les champs coercitif et d'échange et l'ont expliquée par des termes d'anisotropie d'ordre élevé [16, 17]. Il a été observé qu'aucun décalage de cycle ne peut être obtenu pour une épaisseur de couche antiferromagnétique inférieure à un seuil. La valeur de ce seuil dépend cependant de la nature de l'antiferromagnétique. Par exemple, il peut être évalué à 3 nm ou 4 nm pour FeMn [18, 19], 2,2 nm pour IrMn [20], 1,5 nm pour NiO [21], 10 nm pour MnF<sub>2</sub>, environ 2 nm pour FeF<sub>2</sub> [22] et 5 nm pour MnPt [23] (voir aussi les références [11, 24, 25, 26], mais dont les mesures dans cette gamme sont moins précises). Ces observations traduisent qu'au-dessous d'une épaisseur seuil, la structure de spin de l'antiferromagnétique ne permet pas encore de piéger les moments de l'antiferromagnétique, ce à quoi un auteur propose ainsi un effet de taille finie qui diminuerait la valeur de la température de Néel [27, 28]. En revanche, même au-dessous du seuil, le couplage d'échange existe et se caractérise par une augmentation du champ coercitif, qui marque même, dans certaines études, un maximum avant qu'apparaisse un décalage de cycle. D'autre part, les mesures montrent souvent qu'au-delà d'un certain seuil en épaisseur de l'antiferromagnétique, le champ de décalage décroît [29, 27]. Cette variation montre que l'interaction d'échange dans ces systèmes met en jeu le volume de l'antiferromagnétique et sa configuration en domaines. Ce sont les efforts de modélisation de la structure de l'antiferromagnétique qui permettront d'en comprendre mieux les enjeux.

Les chiffres donnés précédemment correspondent à des mesures faites à température ambiante, mais l'épaisseur minimale d'antiferromagnétique nécessaire pour obtenir un décalage de cycle diminue aux plus basses températures. Dans l'interprétation faite précédemment, cela revient à dire qu'une basse température augmente la stabilité de la structure de spin de la couche antiferromagnétique et permet un décalage de cycle pour une épaisseur d'antiferromagnétique plus faible qu'à température ambiante. D'autres études montrent cependant que l'effet de la température est plus complexe que cela, et qu'une mesure à une plus haute température ne peut pas s'interpréter seulement en termes de changement de l'épaisseur critique d'apparition du champ de décalage [20].

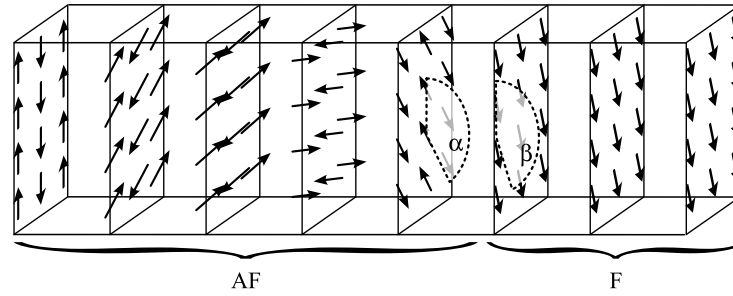


FIG. 1.3 – Illustration du modèle de Mauri. La paroi dans l'antiferromagnétique (AF) est caractérisée par son angle  $\alpha$ . Le ferromagnétique est caractérisé par son angle  $\beta$  et son épaisseur  $t$ , et l'interface par son épaisseur  $\xi$ . Les vecteurs dessinés dans la couche ferromagnétique représentent l'orientation des spins. Les vecteurs dessinés dans la couche ferromagnétique représentent l'orientation des spins d'un des sous-réseaux.

### Modélisation de l'antiferromagnétique

Les efforts de modélisation des propriétés de l'anisotropie d'échange ont été nombreux. La première approche a été celle de Meiklejohn et Bean. Il s'agit de l'image simple qui a été donnée plus haut, et qui considère un antiferromagnétique aux spins fixes, formant une interface lisse avec le ferromagnétique. Cependant, cette image s'est révélée insuffisante pour rendre compte de l'ensemble des phénomènes observés par la suite. L'interprétation naïve suppose en effet que le couplage est un phénomène d'interface qu'il est possible de relier à une constante de couplage  $J$  et à une densité d'atomes (inversement proportionnelle au carré du paramètre de maille). Or le calcul effectué avec ces paramètres donne un décalage de cycle plus élevé de deux ordres de grandeur que celui observé expérimentalement.

Une approche plus récente proposée par Mauri [30] consiste à considérer qu'une paroi, parallèle au plan de la couche, peut se former au sein de l'antiferromagnétique (figure 1.3). Cette paroi est constituée par la rotation dans le plan de la couche, des spins des sous-réseaux antiferromagnétiques. Les calculs réalisés dans le cadre de ce modèle permettent de reproduire l'augmentation de champ de décalage avec l'épaisseur de l'antiferromagnétique puis la stabilisation à une valeur limite.

Le modèle de Malozemoff [31] considère lui une surface rugueuse. Pour une surface antiferromagnétique non compensée, cela conduit à une frustration des moments magnétiques à l'aplomb de la marche atomique (figure 1.4). Une paroi perpendiculaire à la surface se forme. Des domaines de l'antiferromagnétique se forment ainsi à sa surface. Leur taille caractéristique est déterminée par la compétition entre l'énergie de la paroi perpendiculaire et l'énergie du couplage d'interface. Ce modèle conduit à des ordres de grandeur de décalage d'échange proches de ceux donnés par Mauri et des mesures expérimentales.

D'autres auteurs ont étudié le rôle de la structure de spin du volume de l'antiferromagnétique, notamment la structure en domaines et les parois qui séparent ces derniers. Dans le cas d'un couplage fort, ces parois peuvent se retourner pour suivre l'aimantation du plan d'interface du ferromagnétique. Les calculs donnent les caractéristiques précises et notamment les angles critiques des rotations mises en jeu [32]. Pour les couplages faibles, ce même auteur démontre l'existence d'une épaisseur critique au-dessus de laquelle la rotation de la paroi est



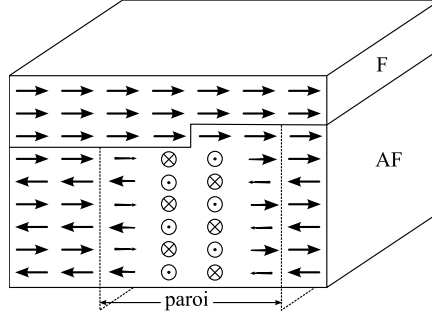


FIG. 1.4 – Illustration du modèle de Malozemoff. Une paroi magnétique perpendiculaire à la surface de la couche se forme autour d’une marche atomique de l’antiferromagnétique.

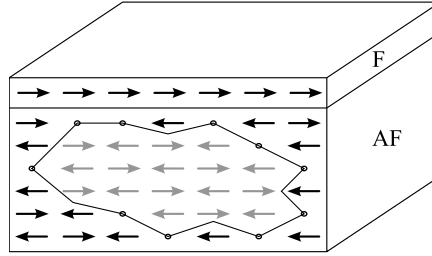


FIG. 1.5 – Illustration du modèle de Nowak. L’antiferromagnétique comporte des défauts qui permettent la formation de domaines. Le déséquilibre entre les aimantations des deux sous-réseaux donne une aimantation nette qui se couple au ferromagnétique.

irréversible. Selon les auteurs, il n’est pas possible d’obtenir dans ce régime un décalage de cycle, en revanche le champ coercitif du ferromagnétique est augmenté en conséquence de la dissipation d’énergie liée au processus irréversible. Un auteur, reprenant ces calculs, relève le rôle des anisotropies d’ordre plus élevé (couplage biquadratique en particulier) qui permettent de diminuer la valeur de ce seuil [12].

D’autres auteurs encore ont fourni une description de l’anisotropie d’échange par des phénomènes de piégeage et dépiégeage de parois partielles [33, 34]. Dans ces modèles, les parois partielles se centrent sur des défauts de l’antiferromagnétique de manière à atteindre un minimum local d’énergie. Ce modèle permet d’expliquer la diminution du champ de décalage ainsi que l’augmentation du champ coercitif consécutive à l’introduction de défauts dans la couche antiferromagnétique. Ce modèle permet de prédire l’effet de l’introduction de défauts à différentes profondeurs dans la couche [35].

Le modèle de Nowak souligne encore le rôle du volume de l’antiferromagnétique. Dans ce modèle, la couche antiferromagnétique comporte des impuretés non magnétiques (figure 1.5). Les sous-réseaux de l’antiferromagnétique ne sont ainsi pas équilibrés, et le moment net qui en résulte participe au couplage avec le ferromagnétique [36].

D’autres auteurs étudient l’aspect dynamique des parois dans l’antiferromagnétique. En effet ces parois peuvent se coupler à celles du ferromagnétique. Lorsqu’une paroi du ferromagnétique se déplace sous l’effet du champ extérieur, une paroi hybride se forme dans l’antiferromagnétique [37].

### Couplage positif, surfaces compensées

D'autres phénomènes ont également suscité des travaux, suite à la découverte du champ de décalage *positif*, c'est-à-dire un décalage du cycle dans le sens opposé à celui qui serait attendu. Ce phénomène est observé lorsque de forts champs sont appliqués lors de la procédure de recuit [38]. L'interprétation de ce phénomène tient au couplage possible entre les spins d'interface de l'antiferromagnétique avec le champ appliqué. En effet, pour les forts champs, le couplage entre spins d'interface et champ appliqué est plus favorable que le couplage entre spins d'interface et spins du ferromagnétique. Cette expérience montrait également la possibilité de déterminer le signe du couplage d'interface, mais ce modèle simple n'est pas à même d'expliquer toutes les données expérimentales. Notamment, un champ de décalage était observé même pour des orientations cristallines telles que le plan d'interface soit compensé.

Une surface antiferromagnétique compensée présente un moment magnétique net nul, le nombre de moments sur les sous-réseaux opposés étant identiques. Une telle surface n'est pas susceptible de produire un décalage d'échange, si l'on se limite au modèle de Meiklejohn et Bean. Cependant, de nombreuses mesures ont montré par la suite que des échantillons présentant des surfaces antiferromagnétiques compensées pouvaient présenter des décalages de cycle. Plusieurs modèles ont été proposés pour expliquer ces observations. D'une part, le modèle de Nowak déjà présenté plus haut prévoit un couplage dans le cas de surfaces compensées, par l'intermédiaire de spins non compensés dans le volume de l'antiferromagnétique. Le modèle de Takano considère au contraire l'effet des spins interfaciaux [39]. Les spins dans le volume de l'antiferromagnétique sont supposés compensés. Dans ce modèle, c'est la rugosité d'interface qui est à l'origine d'une aimantation nette non compensée. Chaque terrasse de la surface, séparée par des marches atomiques, peut en effet présenter une aimantation nette, et être couplée avec le ferromagnétique.

Dans les modèles cités précédemment, le décalage de cycle observé pour des surfaces antiferromagnétiques compensées était dû à un écart à l'idéalité : du fait de défauts de surface ou dans le volume, une aimantation nette existait qui pouvait se coupler avec la couche ferromagnétique. Le modèle proposé par Koon, à l'inverse, considère une interface parfaite et compensée. Les simulations micromagnétiques effectuées montrent que de l'énergie peut être stockée dans des parois planaires, du même type que celles qui avaient été proposées par Mauri, avec un couplage d'interface de type *spin-flop* (figure 1.6). Cependant, ces calculs ont été discutés par la suite. En effet, dans le modèle de Koon, les moments sont confinés à un plan. En prenant en compte l'énergie magnétostatique et en ne contraignant plus les moments dans un plan, Shulthess et Butler montraient que le couplage *spin-flop* dans le cas du système de Koon ne conduisait pas à un décalage de cycle, mais à une anisotropie unidirectionnelle et à une augmentation du champ coercitif [40]. Un résultat comparable a été obtenu par Camley [41].

Une simulation numérique, prenant un modèle de spins de l'antiferromagnétique FeMn a également été effectuée dans le cas où les plans de l'antiferromagnétique parallèles à la couche sont magnétiquement compensés. Cette simulation montre que dans ce cas, seule la présence de défauts d'interface permet d'expliquer la présence d'échange. L'existence expérimentale de ces composantes tridimensionnelles a pu être observée [42]. D'autres auteurs montraient cependant la possibilité d'un couplage dans le cas de systèmes présentant particulièrement peu de défauts [10].

D'autres mécanismes ont été proposés par la suite pour expliquer ce champ de décalage positif mesuré pour des plans d'interface compensés. Notamment, la création d'un état méta-

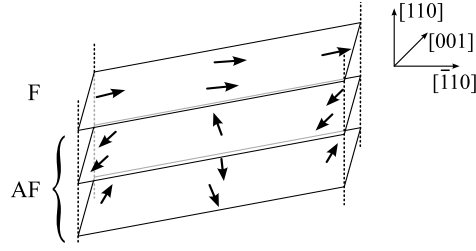


FIG. 1.6 – Illustration des résultats de Koon. Le couplage entre le ferromagnétique et l'antiferromagnétique se fait perpendiculairement. Les angles des vecteurs sont approximatifs.

stable dans l'antiferromagnétique, au voisinage de la température de Néel et par la suite gelé lors du refroidissement [43], l'influence de la valeur du champ appliqué lors du recuit [44].

### Anisotropie induite

L'anisotropie induite est une anisotropie mesurée dans le ferromagnétique, communiquée par l'antiferromagnétique *via* le couplage d'interface. Cette anisotropie peut notamment être mise en évidence par des mesures d'hystérésis effectuées pour différents angles d'application du champ.

L'anisotropie unidirectionnelle est celle la plus immédiatement envisagée pour le couplage d'échange. En effet, le décalage de cycle obtenu par recuit sous champ est lié à la direction et au sens du champ magnétique appliqué lors de la procédure de recuit. Dans le cas le plus simple, la dépendance du champ de décalage en fonction de l'angle  $\theta$  auquel est effectuée la mesure de cycle d'hystérésis, est en  $\cos \theta$  (voir par exemple [4]). Cependant, plusieurs facteurs font que des anisotropies de symétrie d'ordre supérieur peuvent être induites dans le ferromagnétique.

L'anisotropie induite a d'abord été traitée comme un effet d'interface, puisque le couplage d'échange est avant tout un couplage d'interface. Les modélisations proposées par Thiaville intègrent ainsi l'anisotropie induite comme condition aux limites de la simulation [45]. Cependant, des approches plus récentes prennent en compte l'ensemble de l'épaisseur des couches [46]. Mais en plus de ces efforts de modélisation, l'anisotropie induite a été observée expérimentalement, et expliquée de plusieurs façons.

D'une part, l'anisotropie peut être induite par la structure magnétique intrinsèque au matériau. Considérons le cas de FeMn. Cet alliage présente une structure magnétique non-colinéaire [47]. Dans le cas du système  $\text{Fe}_{81}\text{Ni}_{19}/\text{FeMn}^1$ , la structure magnétique de FeMn conduit à un terme d'anisotropie d'ordre 4. La simulation numérique effectuée par l'auteur de cycles d'hystérésis montre que ce terme se retrouve dans la composante angulaire du champ coercitif.

D'autre part, l'anisotropie peut également être induite par la structure cristalline, elle-même conduisant à une structure magnétique présentant une anisotropie particulière. Ainsi, dans le cas d'une structure bivariée présentant une surface compensée,  $\text{MnF}_2/\text{Fe}$ , un terme d'anisotropie d'ordre 4 a été observé dans des mesures de résonance ferromagnétique [48].

Le phénomène d'anisotropie induite reste cependant largement incompris. Dans certains systèmes en effet, l'origine de cette anisotropie induite n'est pas établie. C'est le cas par exemple de  $\text{MnPd}/\text{Fe}$  [49].

<sup>1</sup>Dans la suite, nous noterons par commodité FeNi l'alliage de composition  $\text{Fe}_{81}\text{Ni}_{19}$ . On se référera à l'annexe C pour les conventions de notation.

### Différence entre la température de Néel et la température de blocage

Il a été expliqué plus haut qu'un décalage de cycle pouvait être obtenu en chauffant le système au-delà de la température de Néel, et d'appliquer un champ tout en refroidissant le système jusqu'à la température de mesure. Il n'est en général pas nécessaire de chauffer le système jusqu'à la température de Néel. Une température plus basse, la température de blocage, suffit. Réciproquement, un système présentant un décalage de cycle, chauffé à cette température à champ nul, verra son champ de décalage s'annuler.

Cet effet peut être constaté par exemple sur des antiferromagnétiques tels MnPt, dont la température de Néel est de l'ordre de 900 °C et pour lesquels un champ de décalage peut être obtenu pour des recuits vers 250 °C [50]. Pour d'autres systèmes en revanche, la température de blocage peut être très proche de la température de Néel. C'est le cas de FeF<sub>2</sub>/Fe [51]. La valeur de la température de blocage dépendant de l'épaisseur de l'antiferromagnétique, de nombreux auteurs sont arrivés à la conclusion que l'existence de la température de blocage était liée à un effet de taille finie, notamment liée à la taille des grains [52]. Cette interprétation a été contestée plus récemment par Zaag [53]. L'auteur de cette dernière publication a étudié parallèlement la température de Néel et la température de blocage de bicouches Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/CoO de différentes épaisseurs. Ses résultats montrent que dans le cas du système étudié, la réduction de température de blocage ne peut pas être expliquée par un effet de taille finie. Le modèle de Fulcomer et Charap [54] permet de donner une interprétation de la température de blocage dans le cas de fines couches antiferromagnétiques polycristallines. La couche est considérée comme une assemblée de grains antiferromagnétiques découplés entre eux et couplés avec la couche ferromagnétique. Les grains peuvent s'orienter dans le champ pour minimiser leur énergie, cependant ils doivent pour cela vaincre une barrière d'énergie. La température de blocage est alors, dans cette perspective, la température au-dessus de laquelle les grains antiferromagnétiques peuvent se réorienter pendant la durée de l'expérience. À partir de ce modèle, un auteur a relié la différence entre température de blocage et température de Néel à l'énergie de paroi de domaine dans l'antiferromagnétique et à l'énergie de couplage d'interface à 0 K [55].

### 1.1.2 Moyens de mesure

L'anisotropie d'échange est susceptible de modifier les propriétés d'une couche ferromagnétique. Il est donc possible d'en mesurer les effets à l'aide de toutes les techniques usuelles permettant d'étudier des couches ferromagnétiques et notamment les méthodes d'obtention de cycles d'hystérésis. Une revue de l'ensemble des moyens de mesure existe dans la littérature [52]; nous le compléterons de quelques développements instrumentaux récents après un bref rappel des méthodes classiques d'études du champ de décalage.

Les mesures d'aimantation apparaissent comme naturellement adaptées. Ainsi, les techniques *vibrating sample magnetometry* ou VSM (par exemple [20]), *alternate gradient force magnetometry* ou AGFM (p. ex. [56]) sont utilisées, ainsi que *superconducting quantum interference device magnetometry* ou SQUID (p. ex. [57]). Ces techniques donnent directement accès à l'aimantation du matériau. Elles permettent ainsi de mettre en évidence les spins en excès dans le volume de l'antiferromagnétique [58], induits par la procédure de recuit sous champ. Ces spins en excès se traduisent par un décalage du cycle d'hystérésis sur l'axe de l'aimantation. Compte-tenu du faible nombre de moments non-compensés dans le volume de l'antiferromagnétique, cette mesure est particulièrement délicate; elle ne sera possible qu'à

l'aide des techniques les plus sensibles, comme le SQUID ou les mesures aux grands instruments présentées par la suite.

D'autres techniques permettent d'avoir accès au cycle d'hystérésis. C'est le cas de l'effet magnéto-optique ou MOKE (*magneto-optical Kerr effect*), très largement utilisé dans les travaux précédemment cités. C'est également le cas de mesures de magnétorésistance anisotrope (p. ex. [59]). Les auteurs de l'article cité soulignent l'intérêt particulier de cette mesure. Elle ne fournit pas la même information que la mesure d'aimantation et leur a permis de mettre en évidence une asymétrie intrinsèque dont il n'y a pas trace dans les mesures magnétométriques.

La résonance ferromagnétique ou FMR est également une méthode de mesure permettant d'obtenir des informations sur la nature du couplage d'interface. Le principe est de soumettre un échantillon à une excitation électromagnétique de fréquence de l'ordre du gigahertz tout en faisant varier le champ extérieur appliqué. Cette étude est souvent réalisée en fonction de la température ou de l'angle d'application du champ. Elle permet d'obtenir des informations sur la structure de spin à l'interface. Notamment, les interactions anisotropes élargissent les pics de résonance [60]. Des termes d'ordre élevé ont également été associés à des fluctuations d'orientations de spin ferromagnétique à l'interface avec l'antiferromagnétique [61].

Les mesures de cycles d'hystérésis présentent cependant le défaut de réaliser une mesure *via* un phénomène irréversible – le renversement de l'aimantation. D'autres types de mesures ont été développés, basés sur des techniques de rotation d'échantillon. Ces mesures ont été utilisées dès la découverte de l'anisotropie d'échange, en particulier la mesure de couple (*torque*). Les méthodes de rotation permettent, grâce à l'application de faibles perturbations, de réaliser une mesure au cours de processus physiques réversibles. Les résultats obtenus sont ainsi plus faciles à ajuster à des modèles. Ces techniques donnent accès aux différents ordres de l'anisotropie ; l'anisotropie d'échange  $y$  est mesurée comme une composante d'ordre 1. Plusieurs techniques ont été développées à partir de l'idée de rotation de l'échantillon dans le champ (ou réciproquement). C'est notamment le cas de mesures magnéto-optiques tournantes ROT-MOKE [62], qui consiste à mesurer la dépendance angulaire de l'effet Kerr lors de la rotation d'un champ magnétique. Une technique analogue basée sur la magnétorésistance anisotrope a également été proposée [63, 64, 65]. Une technique très récemment développée, *transverse bias initial inverse susceptibility and torque* ou TBIIST permet de mesurer les dérivées premières et secondes de la fonction d'énergie en fonction de l'angle de l'aimantation [66]. Cette technique sensible d'après ses auteurs jusqu'au 12<sup>e</sup> ordre d'anisotropie, n'a pas encore été appliquée à la mesure de champ de décalage, mais il n'y a nul doute qu'elle y serait très prometteuse. L'auteur de l'article y fournit par ailleurs un aperçu et un historique des autres méthodes de détermination d'anisotropie à l'aide de mesures angulaires, auquel nous renvoyons pour plus de détails concernant ces méthodes que nous n'évoquons pas ici.

Le champ de décalage peut aussi être sondé à l'aide de techniques spécifiques aux grands instruments. Sous l'effet d'une irradiation par des rayons X monochromatiques polarisés, plusieurs types de données peuvent être acquises. Ces techniques se distinguent par l'accès qu'elles donnent aux spins d'interface [67]. Leur étude, difficile par d'autres méthodes, est d'un intérêt capital pour la vérification des modèles de couplage d'échange.

- le spectre d'absorption des rayons X utilisant le dichroïsme magnétique circulaire ou linéaire, XMCD et XMLD (voir la référence [18], notamment ses références 14 à 16). Le contraste magnétique vient de la différence du coefficient d'absorption en fonction de la polarisation du faisceau lumineux et de la direction des axes magnétiques ;
- l'émission d'électrons consécutive à une illumination par un rayonnement monochromatique et polarisé de rayons X, *X-ray photoemission electron microscopy* ou X-PEEM (p.

- ex. [68, 69, 70]). Cette technique peut être utilisée dans un système d'imagerie à des fins d'observation de domaines, avec une résolution de l'ordre de 50 nm ;
- le signal de réflectivité : la technique *soft X-ray resonant magnetic reflectivity* ou SXRMR [71] permet également d'effectuer des cycles d'hystérésis avec une sélectivité chimique, mais avec une possibilité d'étudier des couches plus profondément enterrées que dans la technique PEEM, où la profondeur sondée est limitée par le libre parcours moyen des photoélectrons dans le matériau.

Un ensemble de techniques particulier est également utilisé pour l'étude de l'anisotropie d'échange : l'observation directe des domaines magnétiques. Ces techniques apportent des informations utiles concernant la morphologie des domaines et le mode de renversement de l'aimantation. Parmi les techniques utilisées, l'imagerie X-PEEM, la microscopie à force magnétique ou MFM (par exemple [72]), la microscopie Kerr (par exemple [37, 73, 74]), la microscopie électronique de Lorentz [75] ou encore l'holographie électronique [76].

## 1.2 L'alliage MnPt

L'interaction d'échange a acquis une grande importance dans les applications du magnétisme. Elle s'est révélée capable d'augmenter considérablement le champ coercitif de matériaux ferromagnétiques en couche mince, de repousser la limite du superparamagnétisme [77], d'induire de l'anisotropie et ainsi permet d'envisager des médias de stockage toujours plus performants. L'interaction d'échange est déjà au cœur des technologies du stockage d'information, au travers des vannes de spin qui seront présentées plus loin. Elle a suscité des développements nombreux concernant la configuration de spin d'interface. Pour ces raisons, cette étude présente un intérêt aussi bien fondamental qu'appliqué. Le choix de l'alliage MnPt pour réaliser cette étude repose sur un ensemble de propriétés aussi bien physiques que chimiques, que nous allons maintenant aborder.

### 1.2.1 Propriétés générales

Dans l'objectif d'étudier l'interaction d'échange, nous devons choisir une composition présentant des propriétés antiferromagnétiques et une variation graduelle de propriétés magnétiques avec l'ordre chimique. Pour cela, nous présentons les propriétés de l'alliage  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  en fonction de sa composition.

Le diagramme d'équilibre du système  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  (figure 1.7) indique qu'à température ambiante, tous les alliages dont le taux atomique en platine est supérieur à 1 % présentent une structure ordonnée,  $L1_0$  (composition équiatomique) ou  $L1_2$  (composition atomique 25 % en Mn ou Pt). Ces structures présentent chacune une large zone de stabilité en composition.

Les études les plus anciennes donnaient certaines compositions de  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  comme ferromagnétiques [78]. Des études plus récentes ont attribué à  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  des propriétés ferromagnétiques ou antiferromagnétiques. Ces propriétés sont associées aux composés définis MnPt,  $\text{Mn}_3\text{Pt}$  et  $\text{MnPt}_3$ . Le premier est antiferromagnétique, les deux suivants ferromagnétiques. Lorsque ces alliages sont à l'état de solution solide (chimiquement désordonnée), les propriétés magnétiques varient d'un auteur à l'autre, montrant l'influence de la méthode d'élaboration.

Pour toutes les compositions, l'alliage désordonné  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  ne présente, le plus souvent, aucune propriété ferromagnétique ou antiferromagnétique. On peut noter qu'un ordre partiel dans  $\text{Mn}_3\text{Pt}$  ne conduit pas nécessairement à des propriétés antiferromagnétiques [79]. Ce dernier auteur n'a en effet pas trouvé de champ de décalage dans la bicouche FeNi/Mn<sub>3</sub>Pt, ce



qui montre qu'il n'y a pas de couplage entre la couche ferromagnétique et la phase  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  étudiée. Cette conclusion est cependant indirecte ; il n'est pas exclu que le matériau mesuré soit antiferromagnétique mais que pour une raison liée à la configuration magnétique à l'interface, le couplage ne se produise pas. Une autre étude [80] dans le cas d'un alliage  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  chimiquement désordonné, pour  $x \simeq 0,1$ , montre la présence d'un champ de décalage dans la bicouche  $\text{MnPt}/\text{FeNi}$  et conclut à une structure antiferromagnétique de l'alliage  $\text{MnPt}$ . Par contraste, ces mesures montrent que pour  $x \simeq 0,6$ , il n'y a pas de champ de décalage. Cela signifierait qu'à cette composition, l'alliage  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  désordonné n'est pas antiferromagnétique, ou que le couplage n'a pas lieu pour une autre raison. L'alliage  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  pour  $x \simeq 0,9$  a été trouvé antiferromagnétique [81]. L'intensité du champ de décalage augmente avec l'épaisseur de l'antiferromagnétique avant de se stabiliser (voir paragraphe 1.1.1). Dans le cas de ce système, il faut une épaisseur de  $\text{MnPt}$  au moins égale à 10 nm de façon à obtenir la valeur maximale du champ de décalage.

Une étude des propriétés magnéto-optiques de  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  dans la zone proche en composition de  $\text{Mn}_3\text{Pt}$  est donnée par un auteur [82]. Cette étude rappelle notamment l'historique de ces mesures : en 1983, aucune rotation Kerr n'était mesurée sur cet alliage. Mais cette première mesure était faite sur des échantillons massifs polis, et il avait été montré par la suite que l'étape de polissage était en cause dans ces résultats. Des mesures faites sur des monocristaux épitaxiés ont, depuis, permis de réaliser des mesures des propriétés magnéto-optiques intrinsèques de  $\text{Mn}_3\text{Pt}$ . Il s'agit d'un ferromagnétique fort, dont le moment magnétique par maille élémentaire est établi à près de  $4 \mu_B$  [82, 83, 84]. La température de Curie vaut  $375^\circ\text{C}$  [85]. Les atomes de Pt sont porteurs d'un moment magnétique induit par les atomes de Mn et couplé antiferromagnétiquement avec eux. La présence de ce moment magnétique a été déterminée expérimentalement [84, 86]. Sa valeur a également été retrouvée par simulation numérique [87].

L'alliage ordonné équiatomique, de structure  $\text{L1}_0$ , se caractérise par une alternance de plans purs de platine et de manganèse (figure 1.8). Compte tenu de cette alternance, une direction de l'espace présente des propriétés privilégiées. La structure  $\text{L1}_0$  n'est donc pas cubique mais quadratique. En pratique, cette alternance, selon l'axe nommé  $c$ , de plans purs d'espèces différentes conduit à une valeur de paramètre de maille différente selon cet axe, les deux autres axes ( $a$  et  $b$ ) restent équivalents et caractérisés par un paramètre de maille de même valeur. L'atome de manganèse ayant un rayon plus petit que l'atome de platine [89], la succession de plans purs conduit à un paramètre de maille plus petit dans la direction  $c$ . Ainsi, les paramètres de maille en volume valent  $a = b = 0,400\,20\text{ nm}$  et  $c = 0,366\,47\text{ nm}$  [90].

Au voisinage de la composition équiatomique, les propriétés magnétiques de  $\text{MnPt}$  ont longtemps été discutées. Différentes méthodes d'élaboration ou des compositions légèrement différentes ont conduit à des comportements magnétiques très différents. Ainsi un comportement ferromagnétique ou ferrimagnétique était rapporté pour des températures proches de la température ambiante [78], et même légèrement supérieures à la température ambiante, lorsque la composition atomique en platine dépasse 52 %. Un comportement ferromagnétique a également été observé pour  $\text{MnPt}$  chimiquement désordonné [91] (en couche mince comme dans un matériau massif). Il a également été mesuré que  $\text{MnPt}$  désordonnée présentait une matrice antiferromagnétique avec, en son sein, des grains ferromagnétiques [92]. D'autres auteurs ont trouvé que  $\text{MnPt}$  désordonné est paramagnétique [93]. L'exemple n'est pas isolé, ainsi  $\text{FePt}_3$  peut être ferromagnétique ou antiferromagnétique selon son état d'ordre ou sa composition exacte (voir les références 5 et 6 de [94]).

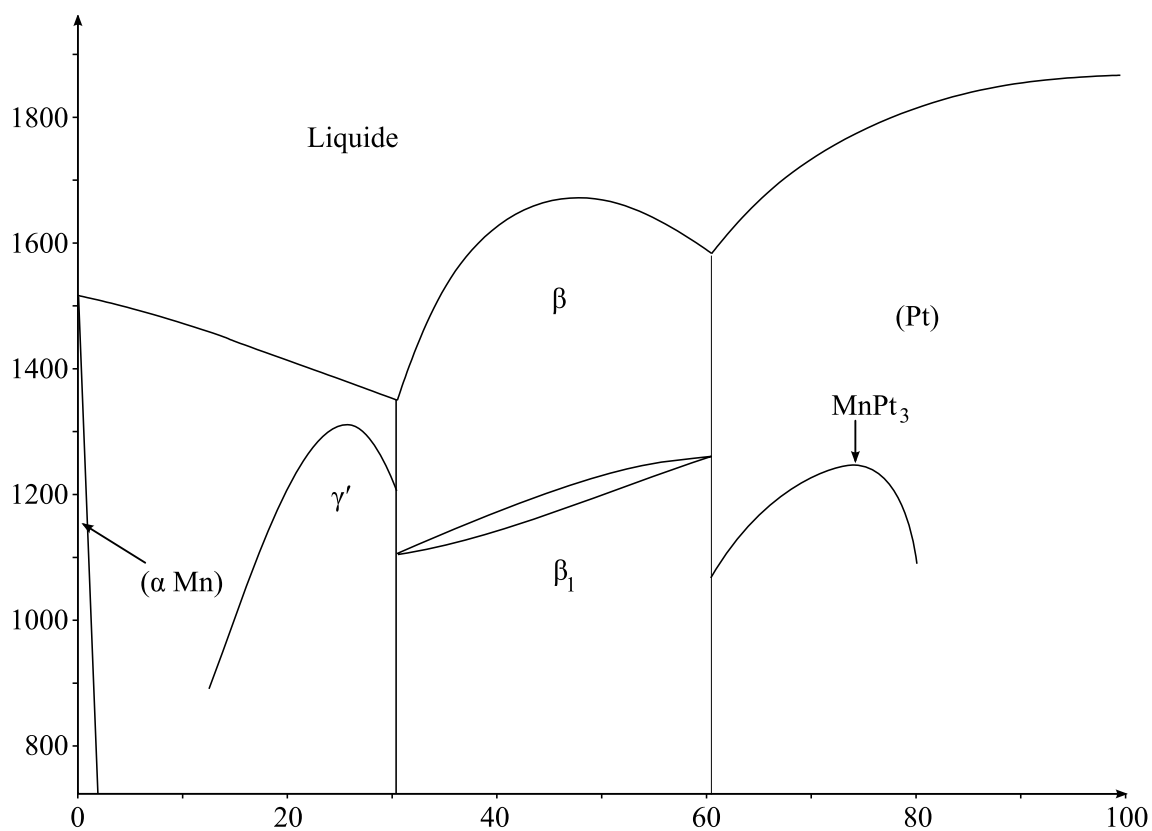


FIG. 1.7 – Diagramme de phase de l'alliage MnPt simplifié, d'après [88]. La phase notée  $\beta_1$  sur le diagramme est de type  $L1_0$ . La structure de  $MnPt_3$  est de type  $L1_2$ . L'abscisse donne la composition atomique en platine de l'alliage, l'ordonnée donne la température en Kelvins.

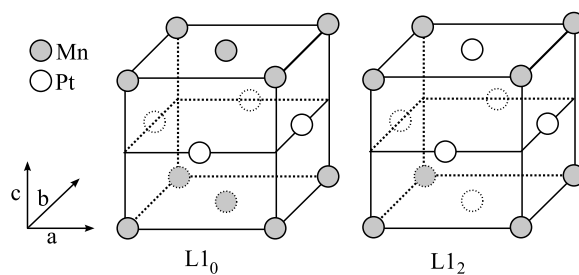


FIG. 1.8 – Illustration des structures  $L1_0$  et  $L1_2$  dans l'exemple des structures MnPt et  $MnPt_3$ .



Le comportement antiferromagnétique de la phase ordonnée équiatomique est désormais bien établi. Rappelons que la phase  $L1_0$  est stable dans une large zone de composition. Cependant, les propriétés magnétiques de  $Mn_xPt_{1-x}$  sont très sensibles à la composition au voisinage de  $x = 0,5$ .

La résistivité de  $Mn_xPt_{1-x}$  montre par ailleurs un maximum à la composition  $x = 0,7$ , la composition équiatomique présentant à  $x = 0,5$  un maximum local [11].

Une étude du système  $MnPt/FeNi/Pt$ , où  $FeNi$  est monocristallin mais  $MnPt$  polycristallin, montre que le couplage d'échange le plus intense est obtenu pour la composition équiatomique, ce maximum étant très marqué [95]. Parmi les échantillons qui n'avaient pas la composition équiatomique, ceux qui comportaient légèrement plus de manganèse donnaient un champ de décalage plus important que ceux comportant légèrement plus de platine. Un autre auteur trouve également un maximum de champ de décalage pour la composition équiatomique [96].

La température de Néel a été étudiée, du point de vue théorique et expérimental, en fonction de la composition. La température de Néel la plus élevée a été trouvée pour la composition équiatomique, où elle atteint  $975\text{ K} \pm 10\text{ K}$  [94]. Un écart de 5 % en composition abaisse la température de Néel de 80 K pour un matériau présentant un léger excès en platine et de 200 K pour un matériau présentant l'excès inverse [97]. Les deux auteurs cités s'accordent parfaitement sur les mesures de température de Néel. Le premier auteur observe une transition magnétique à 700 K, caractérisée par un changement d'orientation des moments magnétiques, qui s'alignent alors perpendiculairement à l'axe  $c$ . Cette transition magnétique conserve le caractère antiferromagnétique de  $MnPt$ . Le deuxième auteur n'est pas en mesure de confirmer l'existence de cette transition.

Deux structures magnétiques ont été proposées pour  $MnPt$ . L'une d'elles présente des moments perpendiculaires à l'axe  $c$  [98], l'autre présente des moments parallèles à l'axe  $c$  [94]. D'autres auteurs enfin ont indiqué que l'orientation des moments dépend de la composition [99]. La structure qui a donné lieu au plus large consensus considère que les moments sont parallèles à l'axe  $c$ , selon le schéma donné ci-après (figure 1.9).

Pour l'étude de l'interaction d'échange, la connaissance de la structure de spin est capitale. Notamment, il est important de savoir si l'interface présente une aimantation nette ou si cette aimantation est compensée. Selon la structure donnée plus haut, les plans (001) sont ainsi compensés, et les plans (100) et (010) non compensés.

De cette étude, nous retenons que la composition équiatomique de l'alliage  $Mn_xPt_{1-x}$  montre nettement des propriétés antiferromagnétiques ainsi que des maxima du champ de décalage et de la température de Néel. Ce sont des propriétés particulièrement adaptées aux systèmes couplés par échange, comme en témoignent les nombreuses applications où  $MnPt$  est désormais utilisé.

### 1.3 Applications de $MnPt$

Compte-tenu de ses propriétés antiferromagnétiques,  $MnPt$  est envisagé comme matériau destiné au couplage d'échange dans les applications industrielles. Bien que le ternaire  $MnPtPd$  ait précédemment été étudié [100], la première utilisation de  $MnPt$  dans un système couplé date de 1997 [79]. Dès lors,  $MnPt$  est envisagé comme couche antiferromagnétique pour des vannes de spin. Les vannes de spin basées sur le champ de décalage [101] sont des multicouches magnétiques qui depuis plusieurs années sont les composants les plus utilisés pour la fabrica-

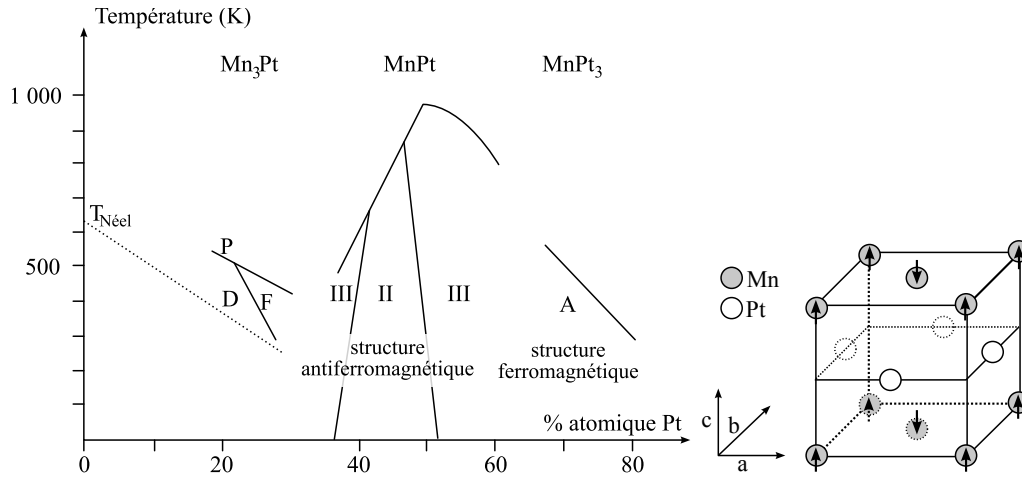


FIG. 1.9 – À gauche, diagramme de phase magnétique pour  $Mn_{1-x}Pt_x$  simplifié, d'après [94]. Les lettres portées sur le diagramme correspondent aux structures identifiées par les auteurs. La lettre F désigne une structure antiferromagnétique à moments parallèles à un axe de type [001]. La lettre D désigne une structure où les moments s'orientent dans des directions de type [112]. La lettre P désigne la structure paramagnétique, au-delà de la température de Curie. La lettre A désigne une structure ferromagnétique à moments parallèles à un axe de type [001]. Le chiffre III désigne une structure antiferromagnétique à moments planaires. Enfin, le chiffre II désigne une structure antiferromagnétique à moments colinéaires. Cette dernière structure est représentée à droite.

tion de têtes de lecture de mémoires magnétiques. Ces capteurs fonctionnent grâce à l'effet de magnétorésistance. Le principe de la mesure repose sur le fait que la résistance électrique d'une multicouche (comportant deux couches ferromagnétiques séparées par une couche non magnétique) est plus faible lorsque les deux couches ont des aimantations parallèles. La couche appelée libre est destinée à s'orienter dans le champ de fuite émis par le média magnétique, l'autre sert de référence. Cette dernière est couplée avec une couche antiferromagnétique. L'effet de décalage du cycle d'hystérésis et d'augmentation du champ coercitif donne à la couche ferromagnétique de référence la stabilité nécessaire. La couche antiferromagnétique ne contribuant pas à la variation de magnétorésistance mesurée dans la vanne de spin, elle pourrait être réalisée dans un matériau isolant. Cependant, les antiferromagnétiques métalliques ont l'avantage de présenter des températures de blocage plus élevées, et créent des champs d'échange plus importants.

Dès lors, des auteurs étudient l'utilisation de MnPt dans des vanes de spin. C'est d'abord pour sa résistance à la corrosion et pour sa haute température de blocage que MnPt est étudié [102]. MnNi et MnPt ont chacun des avantages, l'un ayant une température de blocage plus élevée, l'autre permettant des champs d'échange plus grands. Un auteur propose une bicouche MnPt/MnNi laminée [103], pour tenter de combiner les avantages des deux matériaux.

C'est ensuite la stabilité thermique des structures obtenues qui retient l'attention. En effet, pour une vanne de spin, destinée à être intégrée dans un dispositif industriel, la stabilité thermique de l'anisotropie d'échange est directement liée à la durée de vie de l'appareil. Il s'agit donc de déterminer les températures limites d'utilisation, qui seront d'autant plus élevées que le sera la température de blocage de l'antiferromagnétique. Ainsi, en raison de

la température de blocage élevée de MnPt (290 °C), quoique plus faible que celle de MnNi (310 °C), les échantillons de vannes de spin utilisant MnPt montrent une très grande stabilité de la direction de piégeage à haute température. Un recuit à 200 °C en présence d'un champ magnétique perpendiculaire à la direction initiale du piégeage [50] fait très peu tourner la direction de piégeage. Cet aspect montre également que FeMn et IrMn ne sont pas adaptés aux applications. Les températures de blocage de ces deux derniers matériaux sont en effet plus faibles que les températures de recuit considérées ici, et la direction de piégeage change après le recuit. D'autres mesures faites sur des vannes de spin basées sur des alliages MnPt et NiMn [104] ont montré que la barrière énergétique du phénomène de dégradation de la vanne de spin est plus élevée dans le cas de MnPt, malgré la plus haute température de blocage de NiMn. Dans ce cas, les vannes de spin basées sur NiMn et MnPt étaient élaborées sur un modèle différent, la première en configuration *top*, la seconde en *bottom*, ce qui contribue aussi d'après les auteurs aux résultats plus favorables obtenus avec MnPt. Une étude très complète a également été réalisée, à la fois sur des films et sur des composants nanostructurés [105] de façon à déterminer la durée de vie des composants ainsi élaborés. Le critère choisi pour la définition de la demi-vie est la diminution du signal de 10 %. Cependant, cette durée étant de quelques années, une procédure accélérée a été mise en place. Elle consiste à se placer à une température supérieure à celles qui seront effectivement utilisées dans le dispositif, données qu'il faut ensuite corriger pour obtenir la température maximale de fonctionnement pour une demi-vie fixée à 2,5 ans. L'étude montre que le traitement à appliquer à la couche de MnPt dépend de son épaisseur. Ainsi, pour obtenir un champ de décalage donné, le recuit sous champ à effectuer est d'autant plus long que la couche de MnPt est fine. Pour une épaisseur de 15 nm de MnPt, il n'est cependant pas possible d'obtenir un champ de décalage aussi important que pour une couche de 30 nm, quelles que soient les conditions de recuit sous champ. Pour les faibles épaisseurs, le champ de décalage est ainsi plus faible, en revanche cette valeur reste dès lors plus stable dans le temps. Cet effet est probablement attribuable à la durée de recuit plus longue pour les échantillons plus fins, ce qui pourrait expliquer la différence avec les mesures d'un autre auteur [24] pour qui, à l'inverse, la reproductibilité des vannes de spin est meilleure pour les plus grandes épaisseurs de MnPt. Une diffusion du manganèse à l'intérieur de la structure pourrait expliquer ces résultats, cependant les auteurs n'ont trouvé aucune preuve de ce phénomène dans leurs échantillons. Leur conclusion est que les vannes de spin à base de MnPt peuvent, selon le type d'empilement choisi, fonctionner 2,5 ans en continu à des températures allant jusqu'à 200 °C. Un autre résultat intéressant est l'effet de la stoechiométrie. Les couches déposées par ces auteurs sont toutes proches de la composition Mn<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub>. Cependant, les couches qui, autour de cette valeur moyenne, comportaient plus de platine ont été celles qui ont montré les meilleures propriétés. Cela illustre à nouveau la sensibilité des propriétés de MnPt à la composition. Un autre auteur s'est concentré sur la mesure du taux de décroissance du champ de décalage en fonction de la température, en présence d'un champ de direction opposée à la direction du piégeage de MnPt [106]. Cette expérience montre que la décroissance suit une loi d'activation thermique d'Arrhénius. Cette étude montre également la difficulté de mesurer correctement la température de blocage, la valeur numérique obtenue dépendant des conditions de mesures, notamment de la vitesse de balayage du champ.

À l'inverse des conclusions des études présentées ci-dessus, une autre expérience [25] montre que la température de blocage d'une vanne de spin comportant une couche de MnPt peut dépendre de l'épaisseur de cette couche. Cette température passe ainsi de 300 °C à 400 °C lorsque l'épaisseur de MnPt passe de 20 nm à 30 nm. Cet auteur a également retenu 15 nm

comme l'épaisseur nécessaire en pratique pour les applications souhaitées : au-dessous de cette valeur, le champ de décalage est inférieur au champ coercitif.

Un autre effet à considérer est la diffusion à l'intérieur de la structure. Celle-ci correspond à une dégradation irrémédiable de la structure et doit donc être évitée. L'étude de l'évolution de la résistance de la structure vanne de spin en fonction de la température montre que les vannes de spin à base de MnPt et NiMn présentent une interdiffusion beaucoup plus faible que les vannes de spin utilisant IrMn ou FeMn [50]. Les auteurs attribuent ce fait à la phase ordonnée des deux premiers composés, qu'ils estiment plus stables. Ainsi, pour FeMn et IrMn, l'interdiffusion devient mesurable dès 250 °C. De meilleurs résultats sont obtenus pour NiMn, et meilleurs encore pour MnPt : les vannes de spin à base de MnPt préparées par cet auteur ne commencent à augmenter de résistance qu'à partir de 400 °C. L'auteur interprète ces observations par une diffusion de manganèse dans les structures de FeMn et IrMn. Pour NiMn et MnPt, l'ordre chimique favoriserait une moins grande diffusion. Le mécanisme de cette diffusion du manganèse a été étudié en parallèle [107]. Il ressort de cette étude que la diffusion en volume n'est pas le mécanisme dominant par lequel les vannes de spin à base de MnPt se détériorent. Les auteurs cités attribuent ce rôle à une migration aux joints de grain. Ces diffusions peuvent être réduites en recuisant les structures préalablement à leur utilisation. La stabilité thermique semble peu influencée par la rugosité de la couche et sa texture, ce qui permet aux auteurs de l'attribuer à une propriété intrinsèque de MnPt [108].

L'épaisseur de MnPt nécessaire pour obtenir une vanne de spin fonctionnelle est plus importante que pour d'autres matériaux. Une étude révèle que l'épaisseur de MnPt joue un rôle important dans la reproductibilité des mesures magnétiques sur la vanne de spin ainsi formée [24]. En effet, le champ de décalage mesuré sur la vanne de spin diminue après plusieurs mesures successives. Le taux de cette diminution est moins élevé pour les plus grandes épaisseurs de MnPt. L'auteur a corrélé cette évolution avec une augmentation de l'anisotropie de la couche lorsque son épaisseur augmente.

L'étape suivante dans l'étude de l'application de l'alliage MnPt pour des dispositifs électroniques consiste à caractériser sa réponse en fonction de la vitesse de balayage en champ. Cette donnée est importante sachant que les capteurs magnétiques doivent pouvoir fournir des informations à des taux de plus en plus élevés, aujourd'hui de l'ordre de grandeur du gigahertz. Une étude [109] montre ainsi que le champ coercitif de bicouches couplées NiMn/FeNi et MnPt/FeNi augmente sensiblement avec la vitesse de balayage, alors que le champ de décalage reste constant. Plus précisément, le champ de décalage reste constant avec la vitesse de balayage lorsque l'épaisseur de la couche est supérieure à 10 nm. Pour une faible épaisseur, le champ de décalage diminue lorsque la vitesse de balayage augmente. Les auteurs interprètent ces résultats en faisant appel à un mode de retournement complexe impliquant la formation de domaines dans l'antiferromagnétique. Pour ce qui est de l'application de ces matériaux, les auteurs concluent à la nécessité d'une épaisseur minimale de 15 nm et 25 nm, pour MnPt et NiMn respectivement.

Un autre auteur a montré que pour toutes les épaisseurs de MnPt comprises entre 10 nm et 30 nm, la température de blocage est identique [110]. En revanche, l'évolution du champ de décalage en fonction de la température, dans cette expérience, n'est pas tout à fait la même selon l'épaisseur de la couche.

Bien qu'ayant de nombreux avantages, MnPt présente tout de même un inconvénient : lors du dépôt par pulvérisation cathodique, la trempe que subit le matériau au moment du dépôt empêche la formation de l'alliage ordonné [111]. Ainsi, pour obtenir l'alliage ordonné antiferromagnétique, une étape de recuit est nécessaire, que les auteurs cités précédemment

peuvent faire durer entre 4 h [109] et 15 h [25], dans ces deux cas à 270 °C. Lorsque l'on maintient une bicouche pendant plusieurs heures à ces températures, l'interdiffusion évoquée plus haut est difficile à éviter. L'industrialisation est alors délicate à mettre en œuvre. Certains auteurs ont essayé de trouver une parade à ce problème. Un recuit rapide (de durée de l'ordre de la minute) à plus haute température a ainsi été utilisé pour provoquer la mise en ordre et induire un champ de décalage, sans que l'interdiffusion n'endommage la bicouche [26].

D'autres études parues se concentrent sur la possibilité d'améliorer les vannes de spin comportant une couche de MnPt, par différentes techniques. Il en est ainsi d'une étude sur une de couche libre ferrimagnétique [112], ainsi que de l'étude de l'irradiation d'une vanne de spin comportant une couche de MnPt par des ions carbone [113]. Cette revue bibliographique montre que les alliages de manganèse et platine sont devenus des candidats sérieux pour les applications industrielles. Pour mener à bien notre étude, il est important de connaître les propriétés magnétiques intrinsèques de ces alliages. Notamment, le lien complexe entre ordre chimique et propriétés antiferromagnétiques donne au système MnPt une grande variété de propriétés que nous allons décrire.

## 1.4 L'ordre chimique

MnPt est un alliage pour lequel ordre chimique et propriétés magnétiques sont intimement liés. Non seulement, cet ordre chimique introduit une anisotropie unidirectionnelle en particulier les propriétés du matériau selon un des axes quadratiques, mais encore il conditionne l'existence de l'antiferromagnétisme, propriété pour laquelle MnPt est utilisé dans des capteurs magnétiques. Il est ainsi important de connaître le lien entre les conditions de dépôt et l'état d'ordre chimique de MnPt.

Nous nous intéresserons plus particulièrement à l'alliage MnPt stoechiométrique, dont les propriétés antiferromagnétiques sont intéressantes pour notre étude. Il s'agit maintenant de préciser les conditions de dépôt utilisées dans la littérature et de les corrélérer avec les caractéristiques structurales de MnPt.

Une étude sur la thermodynamique de la transformation paramagnétique à antiferromagnétique de MnPt [93] conclut que la transformation structurale nécessaire au passage de l'alliage désordonné à ordonné est exothermique de bilan  $-12$  kJ/mol. D'après ces auteurs, la transformation n'a lieu qu'à des températures supérieures à 260 °C. Ce dernier résultat étant de nature cinétique, il dépend de la microstructure des échantillons et les valeurs numériques sont donc susceptibles de varier selon les auteurs. De plus, la phase ordonnée étant stable pour les températures inférieures à 900 °C, toute température comprise entre 0 K et 900 °C devrait conduire à une amélioration de l'ordre chimique, à condition d'attendre un temps suffisamment long. Un tableau résume les conditions choisies par plusieurs auteurs ayant élaboré du MnPt (tableau 1.1). Il apparaît que les couches déposées en pulvérisation cathodique, que ce soit à température ambiante ou à plus haute température, doivent être recuites après dépôt de façon à obtenir la phase ordonnée. En revanche, les couches déposées par évaporation sont le plus souvent ordonnées, qu'elles aient été déposées sur un substrat monocristallin ou amorphe. Lorsque les auteurs recuisent les couches minces de façon à induire la transformation vers la couche antiferromagnétique, les températures choisies varient entre 140 °C et 470 °C, pour des durées de l'ordre de grandeur de l'heure, parfois de plusieurs heures. Certains auteurs cependant soulignent l'existence de températures seuils à dépasser pour induire cette transformation, le recuit une fois cette température atteinte pouvant être

bref, de quelques minutes seulement. L'objectif de plusieurs auteurs étant d'obtenir le plus grand champ de décalage possible pour une application industrielle, la température choisie pour le recuit représente un compromis entre l'amélioration de l'ordre chimique de la couche MnPt et les effets d'interdiffusion, qui ont été évoqués plus en détail au paragraphe 1.3.

## 1.5 Conditions de travail

Dans ce travail, nous souhaitons étudier l'interaction d'échange dans des bicouches Fe/MnPt et notamment les effets liés à l'anisotropie. De façon à préserver les effets liés aux directions d'anisotropie magnétocristalline, nous étudierons des structures épitaxiées. En particulier, nous nous intéresserons à la comparaison des propriétés obtenues pour les deux directions d'anisotropie que nous pouvons obtenir : dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire au plan de l'échantillon. Le plan de croissance de type (100) présente une surface non compensée et est ainsi du plus grand intérêt pour notre étude. Les travaux publiés dans la littérature montrent qu'un substrat Pt/MgO (100) permet d'obtenir une structure épitaxiée et que deux types d'anisotropie magnétocristalline, planaire et perpendiculaire, peuvent être obtenus selon les conditions de dépôt. Nous déterminerons ces conditions dans le cas de notre dispositif instrumental et notamment la température du substrat lors du dépôt.

Nous déposerons des couches de composition Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). La couche de chrome déposée au-dessus du substrat de MgO sert à assurer le mouillage avec le substrat. L'épaisseur de la couche de tampon de platine nécessaire a été déterminée par les études précédentes faites au laboratoire. La couche d'alliage MnPt de 30 nm d'épaisseur est suffisante pour obtenir de l'échange. La couche de platine déposée au-dessus de la couche ferromagnétique sert à protéger l'échantillon de l'oxydation à l'air.

réf.	substrat	conditions de dépôt	traitement post dépôt	caractérisation structurale
[79]	MgO (001)	coévap., 200 °C		
	Si (111), SiO <sub>2</sub>	pulvé., 200 °C		désordonné
[95]	SiO <sub>2</sub>	coévap., 40 °C	180 °C, 2 h	
	MgO (001)	coévap. 200 °C		désordonné
[23]	MgO (001)	coévap., ambiante–100 °C		
[114]	Si (001)	coévap. 200 °C		
	MgO (001)			
[115]	MgO (001)	coévap. 200 °C		bicristallin (010) major. (001) minor. (111) major.
[116]	SiO <sub>2</sub> therm.	coévap. 200 °C		
[25]	SiO <sub>2</sub> therm.	coévap. 200 °C	270 °C 5 h–35 h	
[117]	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1 $\bar{1}$ 02) vicinale	coévap. 200 °C		(110) et (001)
[118]	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1 $\bar{1}$ 02) vicinale	coévap. 300 °C		
[97]	(massif)	fusion	800 °C, 3 d	
[119]	Si	pulvé.	240 °C, 2 h	
[11]	quartz	pulvé. RF	200 °C, 1, 5 h	
[96]	SiO <sub>2</sub> natif	pulvé. magn.	318 °C, 1 h	
[60]	verre	pulvé. magn.	260 °C, 1, 5 h	
[111]	verre	pulvé. magn.	140 °C–320 °C 300 s	
[50]	Si	pulvé.	250 °C, 10 h	
[107]	SiO <sub>2</sub> therm.	pulvé. magn.	270 °C–470 °C 2 h	
[120]	Si	pulvé. magn.	280 °C, 4 h	
[67]	Si	pulvé. DC magn.	250 °C, 4 h	
[121]	SiO <sub>2</sub>	pulvé. DC magn.	260 °C 3 h–14 h	
[112]	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	pulvé. DC magn. cible alliée	250 °C, 4 h	

TAB. 1.1 – Croissances de MnPt obtenues par différents auteurs. À la colonne des conditions de dépôt, coévap. signifie coévaporation à l'aide d'un canon à électrons et pulvé. signifie pulvérisation (à l'exception de la référence [114], qui n'indique pas son type d'évaporateur). La température est celle du substrat lors du dépôt, qui est la température ambiante en l'absence d'indication de température. Lorsque ces auteurs ont effectué une caractérisation structurale de leurs échantillons, une indication de l'ordre est donnée en remarque. Dans les autres cas, la présence d'ordre est seulement déduite des propriétés magnétiques, c'est-à-dire de l'existence du couplage d'échange.



# 2

## Système à variants planaires

### 2.1 Structure

Dans cette partie, nous allons voir que la méthode de dépôt de MnPt par coévaporation, qui est la plus simple à mettre en œuvre avec les outils disponibles, conduit à une structure de MnPt bivariée. Pour comprendre les propriétés de cet alliage, nous devons tout d'abord nous intéresser aux propriétés des structures multivariées et l'origine de cette structure.

#### 2.1.1 État de l'art

Dans le cas des dépôts MnPt/Pt que nous élaborons, nous réalisons la croissance d'une structure quadratique, MnPt, sur un substrat cubique. Or dans ce cas, la différence de paramètres de maille entraîne l'existence de contraintes élastiques dans le film. Une brisure de symétrie peut alors être moins coûteuse énergétiquement que l'épitaxie d'un monocristal quadratique ou, plus généralement, orthorhombique. La formalisation de ce mécanisme a été donnée par une étude théorique [122] qui prend en compte la compétition entre énergie élastique stockée dans les déformations et l'énergie relaxée aux joints de grains. Si les propriétés élastiques du matériau (module d'Young, coefficient de Poisson), il est possible de calculer si la structure multivariée est plus stable que le monocristal, ainsi l'épaisseur à partir de laquelle la structure bicristalline devient moins favorable qu'une relaxation par des dislocations parfaites. Pour tenir compte des films pour lesquels la taille des variants n'est pas négligeable devant l'épaisseur, un formalisme plus général ([123, 124]) a été développé par d'autres auteurs.

Les études réalisées précédemment au laboratoire concernaient les alliages ferromagnétiques FePd et FePt. Ces alliages binaires étaient préparés par évaporation des éléments les composants (certains aspects techniques de cette technique de codépôt sont donnés à l'annexe A.1). Le dépôt de ces alliages sur substrat de Pt/MgO (100) à température ambiante conduit à une structure cubique sans ordre chimique, ou présentant un ordre chimique faible. Ces alliages présentent la particularité d'une faible enthalpie libre de formation (table 2.1). Le travail que nous réalisons ici présente la nouveauté de concerner un alliage à forte enthalpie libre de formation. La corrélation observée entre enthalpie libre de formation et ordre chimique obtenu après codépôt indique que nous devrions obtenir un alliage MnPt présentant un ordre chimique élevé sans autre traitement.



alliage	propriétés magnétiques	$\Delta G_f^0$ (kJ/mol)	anisotropie magnétique (meV)	température d'ordre magnétique (K)	S
FeMn	antiferro.	0		520	0
FePd	ferro.	-6	0,342	760	très faible
FePt	ferro.	-19	2,891	760	faible
MnPd	antiferro.	-34		810	fort [125]
MnPt	antiferro.	-42	5,342	975	(ce travail)

TAB. 2.1 – Propriétés thermodynamiques et magnétiques d’alliages métalliques. Ces alliages présentent tous une phase stable chimiquement ordonnée, à l’exception de FeMn. Le tableau fournit l’enthalpie libre de formation [126], énergie d’anisotropie magnétique [127], température d’ordre magnétique (Curie ou Néel) [128] et indication sur l’ordre chimique obtenu lors d’un codépôt à température ambiante. Les détails sur la définition et le calcul de l’ordre chimique à longue distance seront exposés au paragraphe 2.1.9.

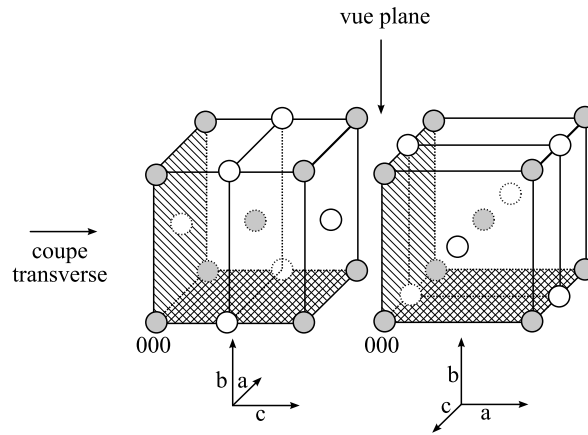


FIG. 2.1 – Réseau réciproque de la structure  $L1_0$ , représentée dans le cas de deux variants d’axe  $c$  planaire. Les plans hachurés correspondent à ceux visibles en microscopie électronique en coupe transverse, les plans quadrillés ceux visibles en vue plane.

### 2.1.2 Méthode de croissance

La croissance des échantillons est effectuée par épitaxie par jets atomiques. Les détails de la procédure de préparation des substrats et de réalisation des dépôts sont donnés à l’annexe A.

### 2.1.3 Croissance

De façon à vérifier l’existence et la nature de la relation d’épitaxie, des mesures de diffraction d’électrons ont été réalisées. Ces observations montrent une structure bicristalline (qui sera étudiée plus avant au paragraphe suivant) associée à la présence d’un fort ordre chimique. La maille quadratique de MnPt se superpose à la maille cubique de Pt selon deux directions perpendiculaires.

Pour comprendre l’origine de cette croissance épitaxiale bivariée, nous devons tenir compte de plusieurs facteurs. La croissance de MnPt à axe d’anisotropie  $c$  perpendiculaire à la couche conduit à des paramètres de maille (mesures présentées au paragraphe 3.2.2) plus proches

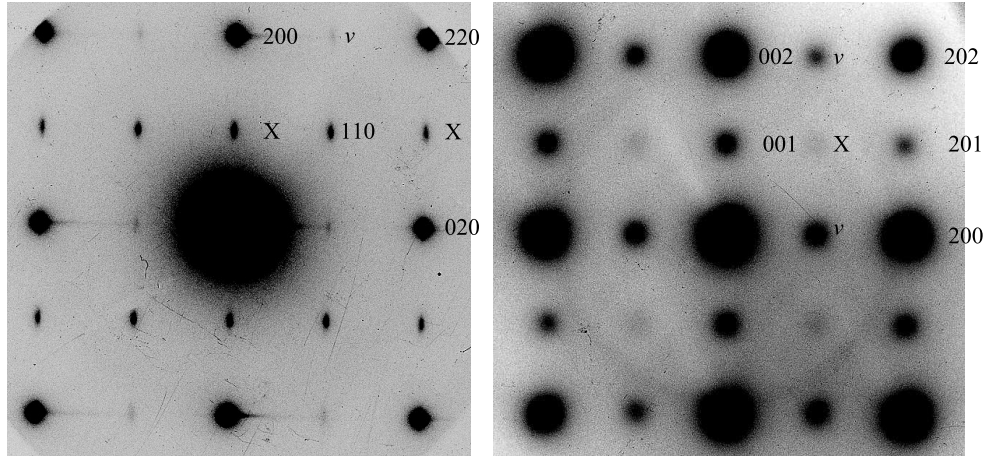


FIG. 2.2 – Diagrammes de diffraction obtenus en microscopie en transmission pour un échantillon Pt (3 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) déposé à température ambiante. À gauche, une coupe transverse, à droite une vue plane. Les diagrammes ont été indexés pour un seul variant choisi arbitrairement. Les taches fondamentales 200, 020, 002, 202 leur sont communes. Les taches notées *v* correspondent au deuxième variant d'axe *c* planaire tandis que les taches notées *X* peuvent correspondre à la présence minoritaire d'un troisième variant d'axe *c* perpendiculaire au plan de la couche, ou à un phénomène de double diffraction. Le cliché a été réalisé en aire sélectionnée dans une zone où le MgO n'est pas visible. L'interprétation des plans de diffraction est donnée sur la figure 2.1.

des valeurs de l'alliage massif que les paramètres de l'alliage à axe d'anisotropie dans le plan (mesures rassemblées au paragraphe 2.1.8). Cependant, le fait que les paramètres *a* et *c* de la structure en volume soient pour l'un plus grand et pour l'autre plus petit que le paramètre de maille du platine permet une accommodation du paramètre de maille. La croissance bivariable est d'autre part favorisée pour des raisons de nature thermodynamique et cinétique.

D'une part, du point de vue thermodynamique, la formation de l'alliage MnPt ordonné est particulièrement favorable, ainsi que le montre la valeur de son enthalpie de formation (tableau 2.1). Localement, une structure ordonnée sera favorisée dès que possible. D'autre part, du point de vue cinétique, les atomes arrivent sur le substrat et y adhèrent, migrent à la surface et éventuellement s'arrêtent de migrer sur un centre de nucléation (un défaut ou un groupe d'atomes déjà constitué). Les caractéristiques de ces phénomènes sont bien entendu dépendantes de la température du substrat. Sachant l'alliage ordonné favorisé énergétiquement, le coût des contraintes élastiques doit être moindre que l'énergie gagnée par la formation de l'alliage. Lors d'une croissance à température modérée (la température ambiante), ce sont des contraintes cinétiques qui vont guider la formation de l'alliage, *via* les possibilités de migration des atomes. Dans le cas d'atomes déposés sur un substrat, la migration entre plans correspond à une barrière énergétique bien plus élevée que la migration en surface. La migration de surface est ainsi plus probable et elle contribue à favoriser cinétiquement l'axe d'anisotropie *c* dans le plan de la couche.

Dans le cas de certains alliages étudiés précédemment au laboratoire (FePd) [129], un phénomène peut conduire à une croissance à axe *c* perpendiculaire : il s'agit d'une croissance par biplans. En effet, il est possible d'envisager un mécanisme où la croissance avec l'axe d'anisotropie perpendiculaire à la couche serait favorisée, pour une faible barrière de potentiel.

élément	$\gamma_0$ (mJ/m <sup>2</sup> )
Mn	1 600
Pd	2 050
Fe	2 475
Pt	2 475

TAB. 2.2 – Tensions de surface des métaux utilisés [126].

Cela serait le cas de la croissance par des biplans MnPt. Cette croissance apparaît d'autant plus favorisée que les éléments Mn et Pt présentent des tensions de surface très différentes (à l'inverse des éléments Fe et Pt déjà étudiés au laboratoire). Une croissance par biplans permettrait ainsi au système Mn-Pt de réduire sa tension de surface (voir tableau 2.2). Les atomes arrivant sur la surface de ce biplan migreraient jusqu'à rencontrer un bord de marche et, selon leur nature, rempliraient progressivement la bicouche. Dans le cas des codépôts que nous avons réalisés, ce mécanisme a vraisemblablement été très minoritaire. Dans le cas, envisagé plus loin, d'une croissance par couches alternées, il sera peut-être plus envisageable.

L'explication de la structure bivariée apparaît alors. Remarquons que la maille de MnPt épitaxiée sur Pt, contrairement à la maille quadratique de l'alliage massif, est orthorhombique. Ses paramètres sont  $a = 0,3988$  nm,  $b = 0,390$  nm,  $c = 0,381$  nm (l'ensemble des paramètres de maille pour le système planaire sont rassemblés au paragraphe 2.1.8). En effet, dans le cas de l'alliage massif, les directions  $a$  et  $b$  sont équivalentes. La maille est alors quadratique. En revanche, dans le cas de l'alliage présentant des variants à axe  $c$  planaire, les paramètres  $a$  et  $c$  sont contraints par l'épitaxie sur le substrat de platine, tandis que dans la direction  $b$ , perpendiculaire au plan de la couche, le cristal n'est pas soumis à cette contrainte. Les paramètres  $a$ ,  $b$  et  $c$  sont donc différents entre eux. Cependant, les paramètres  $a$  et  $b$  sont très proches et, par commodité, on conservera l'appellation de quadratique en référence à la différence entre le paramètre  $c$  et les paramètres  $a$  et  $b$ .

Le substrat de platine quand à lui est cubique de paramètre de maille 0,392 nm. Les observations de diffraction d'électrons (figure 2.2) et de diffraction d'électrons en incidence rasante (figure 2.3) montrent que les mailles de MnPt et Pt sont épitaxiées. Il existe alors trois possibilités d'orientation de l'axe  $c$ , deux dans le plan de la couche et une hors plan. Dans le cas des codépôts, nous avons expliqué que la structure à axe d'anisotropie dans le plan de la couche est favorisée. C'est ce qui ressort également de l'observation qualitative de la figure 2.2. Ces deux orientations possibles correspondent à des cristallites qui nucléent puis grossissent à la surface du substrat. Pour une température donnée la taille obtenue pour les cristallites est liée à la mobilité des atomes ainsi qu'au nombre de centres de nucléation créés.

Le suivi *in-situ* de la croissance par diffraction d'électrons en incidence rasante donne des indications complémentaires sur cette croissance bivariée, notamment en ce qui concerne la rugosité des couches. Dans une série d'images prises lors du dépôt pour différentes épaisseurs déposées de MnPt, nous pouvons observer l'apparition de l'ordre chimique bivarié. Celui-ci se manifeste comme sur les clichés de diffraction d'électrons montrés plus haut, par l'existence de taches de diffraction supplémentaires par rapport à une structure CFC. Les observations permettent de distinguer plusieurs étapes lors de la croissance (figure 2.3). La première image représente la surface lisse et reconstruite du substrat de platine sur laquelle le dépôt va être réalisé (épaisseur 0 nm de dépôt). Dès les premières épaisseurs (images B et C), un halo se place entre les tiges de Pt. Le fait que ce halo soit au milieu des tiges de Pt révèle que l'épi-

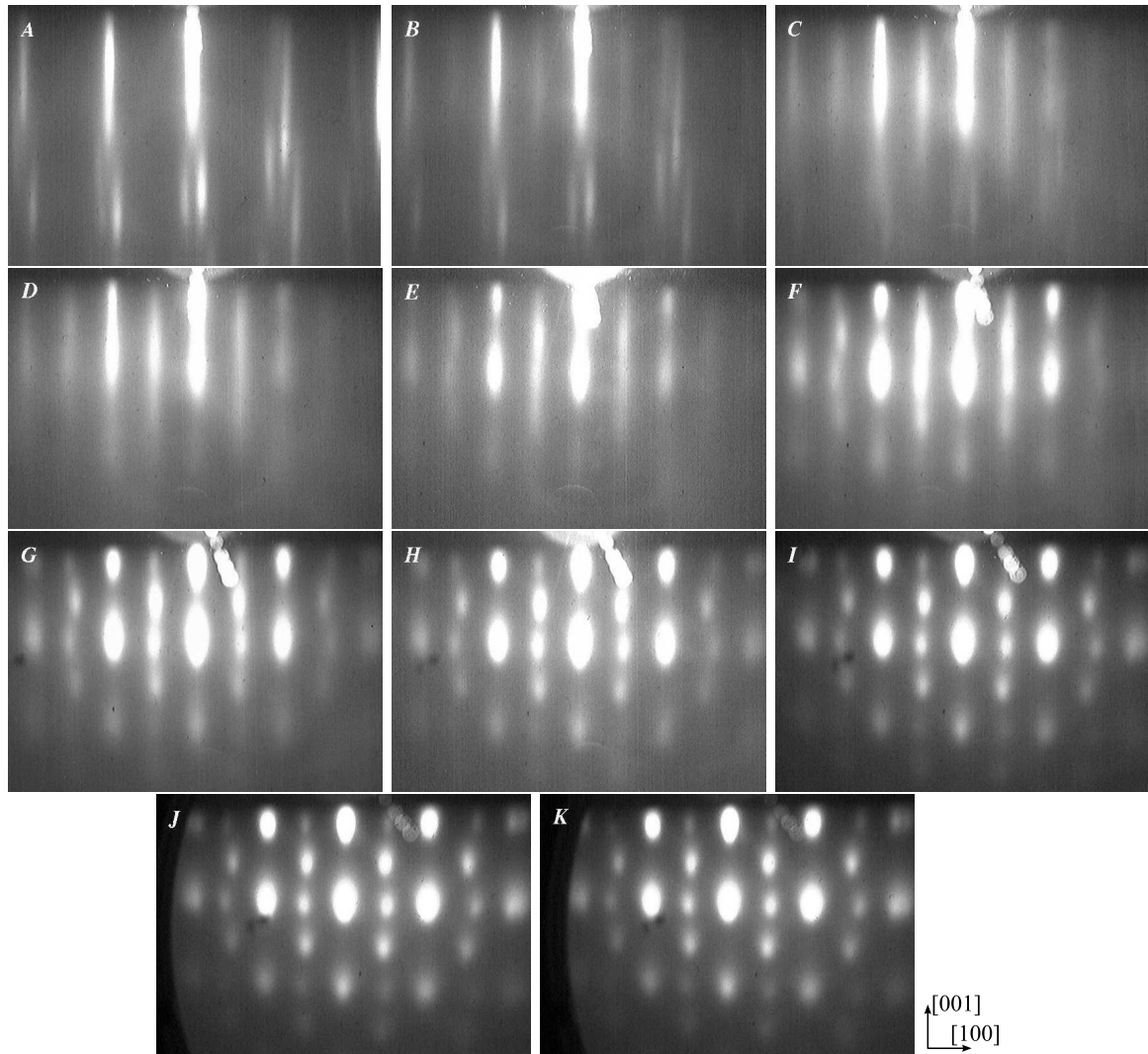


FIG. 2.3 – Série d'images de diffraction d'électrons en incidence rasante pour des épaisseurs croissantes de MnPt codéposé, mettant en évidence l'épitaxie et l'apparition de l'ordre chimique. Les images A à K sont échelonnées en épaisseur de 0 à 30 nm par pas de 3 nm. L'image A montre le substrat de platine. L'azimut utilisé est schématisé sur la figure 2.5.

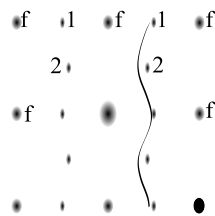


FIG. 2.4 – Schéma interprétatif de la diffraction d'électrons en incidence rasante. L'ondulation due à la présence de deux variants planaire est soulignée. Les signes  $f$ , 1 et 2 dénotent respectivement des taches fondamentales et des taches de surstructure provenant des deux types de variants planaires.

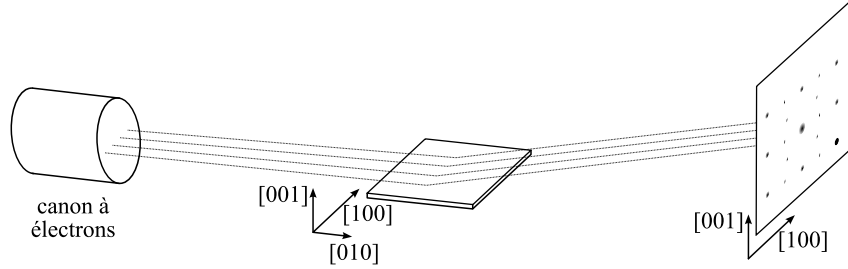


FIG. 2.5 – Position de l'échantillon dans le cas de la diffraction d'électrons en incidence rasante. L'azimut représenté correspond aux observations de la figure 2.3.

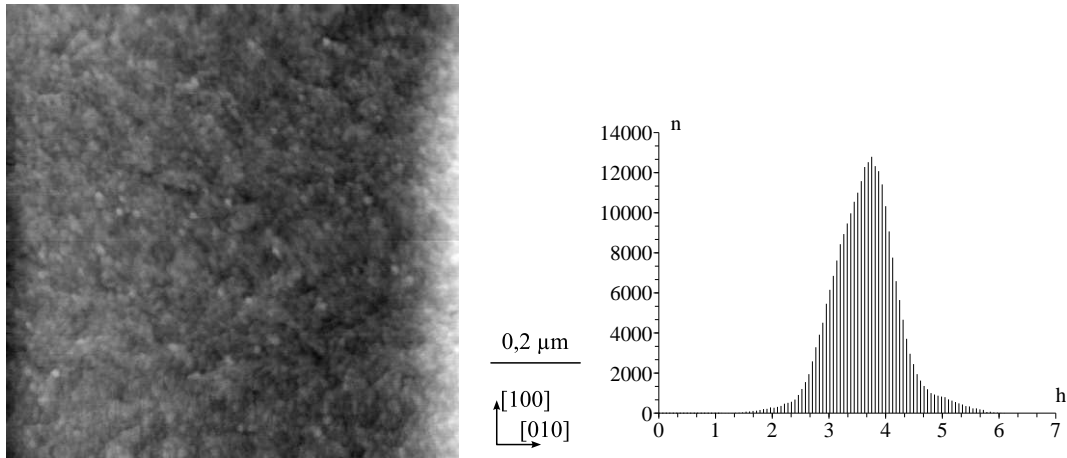


FIG. 2.6 – À gauche, image topographique de microscopie à force atomique, mesurée sur un échantillon de Pt (3 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) déposé à température ambiante. L'image mesure  $1\text{ }\mu\text{m}$  de côté, discrétisés en 512 points. La durée d'acquisition de chaque ligne est fixée à 1 s. La mesure a été réalisée avec une pointe de silicium présentant un rayon de courbure de 10 nm (d'après le fabricant). À droite, histogramme de la topographie de l'échantillon. En abscisse, hauteur mesurée en nanomètres. En ordonnée, le nombre de points de mesure situés dans la tranche de hauteur donnée en abscisse. Dans le cas de cet échantillon, l'analyse des données par un logiciel spécialisé fournit une rugosité en moyenne quadratique de 0,58 nm.



taxie des premières couche est isomorphe, c'est-à-dire que le paramètre de maille de la couche déposée est pendant quelques couches atomiques identique à celui du substrat, ceci entraînant l'apparition de contraintes dans le film déposé. L'observation révèle également que la rugosité de la surface augmente peu et que l'ordre chimique apparaît dès ces épaisseurs faibles. Ce n'est que pour des épaisseurs plus importantes (image E, 12 nm) que l'on commence à distinguer une « ondulation » (figure 2.4). Cette dernière traduit l'existence dans l'échantillon de deux variants. Il s'agit de deux orientations possibles de la croissance de la maille de MnPt, caractérisées par un axe  $c$  situé dans le plan de la couche, selon deux directions perpendiculaires. L'un des variants présente un axe  $c$  parallèle à la direction  $[100]$ <sup>1</sup> du substrat, l'autre variant présente un axe  $c$  parallèle à la direction  $[010]$  du substrat. quadratiques orientés perpendiculairement, n'ayant pas le même paramètre dans la direction du plan perpendiculaire au faisceau électronique. Pour des épaisseurs encore plus importantes (image G, 21 nm), les taches s'individualisent, ce qui montre que la rugosité de la structure a augmenté.

La diffraction d'électrons en incidence rasante montre qualitativement la présence d'une croissance tridimensionnelle de l'alliage MnPt. Une mesure de la rugosité a été entreprise à l'aide de mesures de microscopie à force atomique. La rugosité en moyenne quadratique vaut, pour les échantillons d'alliage déposés à température ambiante, entre 0,5 nm et 0,6 nm (voir figure 2.6).

De façon à obtenir des informations plus précises sur la croissance, des observations de microscopie électronique en transmission ont été réalisées sur ces échantillons. Ces images de microscopie révèlent une morphologie de croissance colonnaire (voir figure 2.7 pour une vue d'ensemble des colonnes de croissance et la figure 2.11 pour une image de microscopie en haute résolution d'une de ces colonnes).

Les clichés de microscopie électronique en haute résolution présentés ici montrent d'importantes variations de luminosité et de contraste (figure 2.10). Ces variations peuvent en grande partie s'expliquer par le procédé d'obtention de la lame mince observée en microscopie. En effet, l'amincissement mécanique puis ionique conduit à une lame dont l'épaisseur croît progressivement du bord du trou vers l'intérieur du matériau. Le contraste de haute résolution variant avec l'épaisseur, on peut s'attendre à ce que le contraste ne soit pas le même en différents endroits de la lame mince. De plus, l'amincissement ne pouvant être parfaitement homogène, des variations locales de contraste apparaissent en raison des variations locales d'épaisseur de la lame. Un amincissement inhomogène est d'autant plus probable que le matériau comportera initialement des défauts, et ce phénomène est donc plus visible sur l'alliage MnPt que sur la couche tampon de Pt. Enfin, des déformations ou d'autres types de défauts ont également un effet sur le contraste observé et contribuent, dans un alliage qui en comporte, à produire des variations de contraste. Ces observations peuvent être reliées à celles faites dans le cas d'alliages FePd/Pd réalisées précédemment au laboratoire [129].

Les clichés de haute résolution montrent clairement le contraste dû à l'ordre chimique des échantillons de MnPt. En effet, l'ordre chimique correspond à une alternance spatiale de période double, en raison de la structure en biplans. Cela se traduit sur l'image de diffraction par la présence d'un pic 001 et sur l'image directe par la présence d'un contraste de période double. Ce contraste est particulièrement visible ici en raison de la grande différence de numéro atomique entre les atomes de platine et de manganèse.

Les clichés de microscopie permettent également de mettre en évidence la jointure entre

<sup>1</sup>Les directions cristallines sont notées par rapport au substrat de MgO. On se référera à l'annexe C pour les conventions de notation.

les grains ordonnés selon un axe différent. Ces joints de grains apparaissent particulièrement fins. Quelques plans atomiques font passer d'un système ordonné à un autre, sans transition désordonnée. Ce constat peut être fait aussi bien sur une vue en coupe (figure 2.12) qu'en vue plane (figure 2.13).

Les échantillons déposés à température ambiante montrent que les colonnes de croissance sont perpendiculaires à la surface de l'échantillon. Leur largeur varie de 5 nm à 8 nm et traversent toute l'épaisseur de l'échantillon. Cette observation tend à montrer que le processus de croissance est piloté par le nombre d'événements de nucléation en début de dépôt. Sur les clichés de microscopie, la superposition des zones de l'échantillon ordonnées selon les deux variants planaires montre la proportion négligeable des zones où l'ordre n'est pas visible.

Lors de la croissance à plus forte température, le schéma exposé ici reste valable, mais à quelques modifications quantitatives près : les cristallites s'allongent sensiblement, leur longueur pouvant ainsi atteindre plusieurs dizaines de nanomètres (figure 2.8). Le variant d'axe  $c$  perpendiculaire à la couche est présent, mais de façon minoritaire. Ce variant ne croît pas en colonnes et ne s'organise pas en plaquettes comme les variants planaires (figure 2.9).

La direction des joints de grains n'est pas la même pour les dépôts effectués à température ambiante et ceux effectués à haute température. Pour les échantillons déposés sur substrat à température ambiante, les colonnes croissent perpendiculairement au plan de l'échantillon. Pour les échantillons réalisés à haute température, les colonnes croissent selon un angle élevé, proche de  $\pi/4$  (figures 2.14 et 2.7). Cette direction s'interprète en tenant compte de la présence des deux variants d'axe  $c$  planaire et d'une part minoritaire du variant d'axe  $c$  perpendiculaire au plan de la couche. De la même façon que la présence de deux variants planaires d'axes  $c$  [100] et [010] donne, dans le plan (001), des directions privilégiées [110] et  $[1\bar{1}0]$ , la présence des variants d'axe  $c$  [001] et [100] (resp. [010]) donnent dans le plan (010) (resp. (100)) des directions privilégiées [101] et  $[10\bar{1}]$  (resp. [011] et  $[01\bar{1}]$ ). En outre, la réalisation d'une interface à  $\pi/4$  est la seule qui permette, dans le cas d'une structure bivariée, de permettre aux deux zones ordonnées de partager, à leur interface, leurs colonnes pures de manganèse et de platine, tout en maintenant la cohérence entre les deux épitaxies.

Nous n'avons observé aucune colonne croissant perpendiculairement à la surface. Il est possible que les colonnes croissent dans les directions [011] et [101] et que, pour une raison instrumentale, nous n'ayons observé qu'un seul type de colonnes. Il est également possible que cette absence d'observation traduise l'orientation de croissance des colonnes. Compte-tenu des deux directions observées, [011] et [101], cela signifierait que les colonnes croitraient selon la direction [111]. Cette direction est par ailleurs la seule qui permette un partage de colonnes atomiques dans tous les cas de joints de grains entre les trois types de grains présents dans ces échantillons déposés à haute température.

Nous en déduisons que ces observations correspondent en réalité à la projection de directions de type [111], qui permettent de minimiser l'énergie élastique aux interfaces entre les trois types de variants présents dans la couche. L'absence de cette orientation pour une plus faible température de dépôt s'explique par l'absence du variant à axe  $c$  perpendiculaire au plan de la couche.

L'augmentation de taille des variants avec la température est également cohérente avec l'idée selon laquelle la croissance est guidée par le nombre d'événements de nucléation en début de croissance. Une plus forte température, en augmentant la mobilité des atomes sur la surface, facilite le grossissement d'un petit nombre de centres de nucléation. Les cristallites de chaque variant sont ainsi plus gros et moins denses. Cette augmentation de la taille de variants avec la température de dépôt a également été observée dans le cas du système bivariant  $\text{FeF}_2$

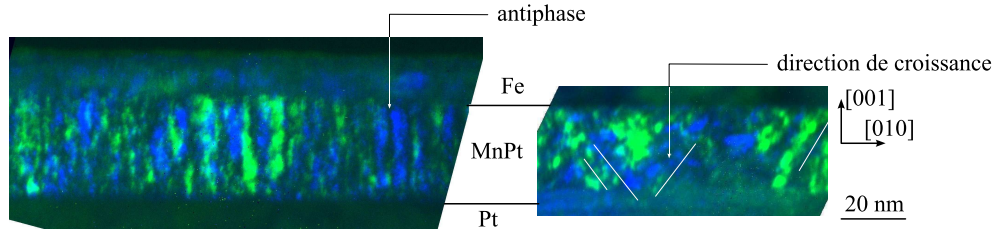


FIG. 2.7 – Composition d’images de microscopie électronique à transmission de deux échantillons de MnPt déposé sur substrat Pt (Pt (3 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100)). À gauche, champs sombres sur un échantillon déposé à température ambiante, montrant la répartition des deux variants planaires : en vert, le variant d’axe  $c$  selon l’horizontale de la feuille (tache 010 dans la nomenclature de la figure 2.2), en bleu le variant d’axe perpendiculaire au plan de la feuille (tache 110). À droite, champs sombres obtenus sur un échantillon déposé à haute température, dans la même convention de couleur. La direction de croissance des colonnes est soulignée. La présence de parois d’antiphase est discutée au paragraphe 2.1.5.

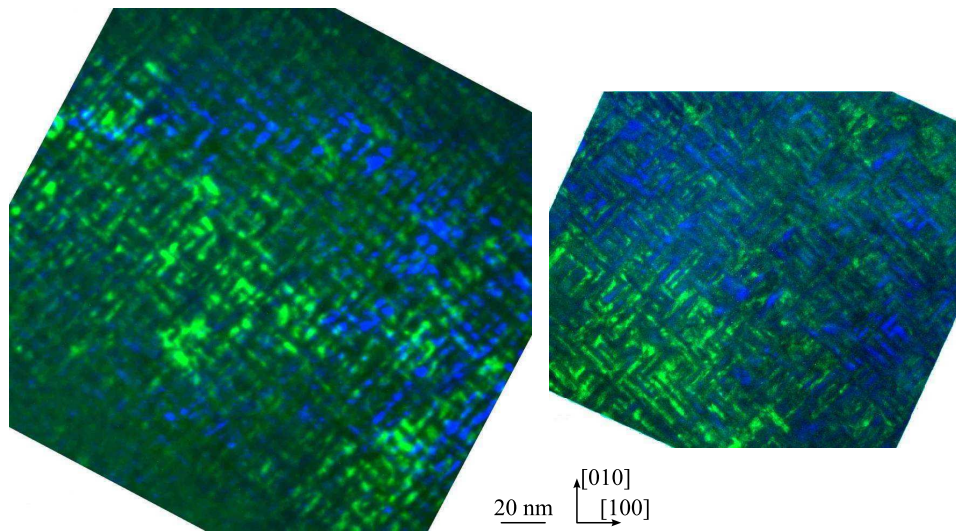


FIG. 2.8 – Compositions d’images en champ sombre d’une vue plane de microscopie électronique en transmission, montrant la superposition des deux variants planaires, pour un dépôt effectué à température ambiante (à gauche) et à 500 °C (à droite). L’échelle et l’orientation des deux images sont identiques. Les couleurs verte et bleue correspondent aux deux variants d’axe  $c$  dans le plan (tache 001 et tache  $v$  proche de la tache 200, dans la nomenclature de la figure 2.2). Ces clichés ont été réalisés sur des échantillons de composition identique à ceux de la figure 2.7. La superposition, en couleurs différentes, des signaux provenant des deux variants permet d’apprécier leur complémentarité. Cependant, de façon à augmenter le signal provenant des variants ordonnés, l’échantillon a été orienté selon la technique de la rangée systématique, ce qui fait que le maximum de luminosité des deux variants n’est pas situé au même endroit.



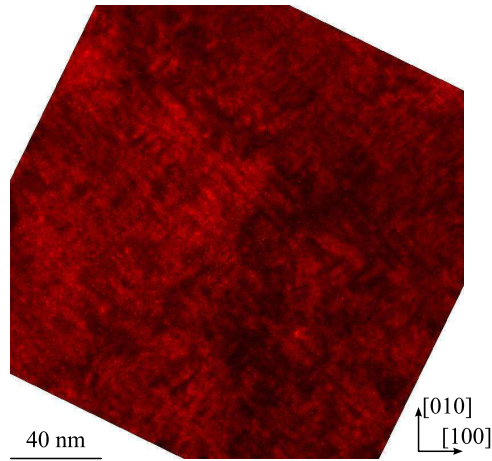


FIG. 2.9 – Image de microscopie électronique à transmission d'un échantillon de MnPt déposé à 500 °C sur platine (même échantillon que celui étudié aux figures 2.7 et 2.8) : vue plane en champ sombre montrant le variant d'axe  $c$  perpendiculaire à la couche (tache notée  $X$  sur la figure 2.2). Sa répartition ne montre pas de structure.

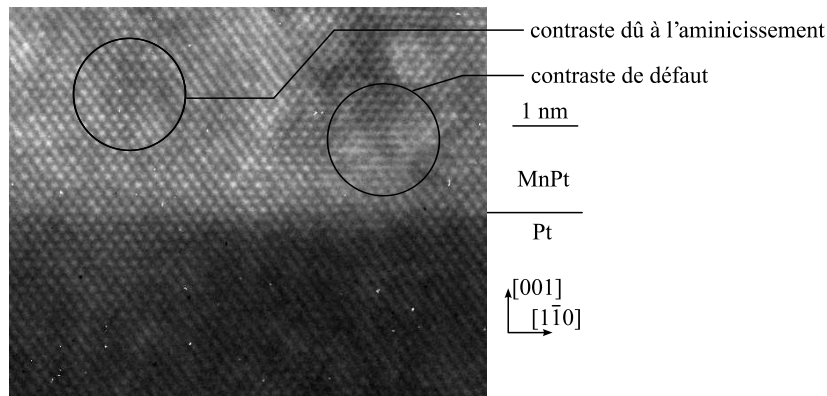


FIG. 2.10 – Observation de microscopie électronique à haute résolution d'une coupe d'un échantillon de MnPt/Pt déposé à température ambiante. La partie supérieure (claire) de l'image montre la couche MnPt, la partie inférieure (sombre) montre la couche de platine. Deux types de variations de contraste sont ici visibles : un contraste de défaut (à droite) et une variation de contraste due à l'aminicissement (à gauche). L'image montrée est extraite de la figure 2.15.

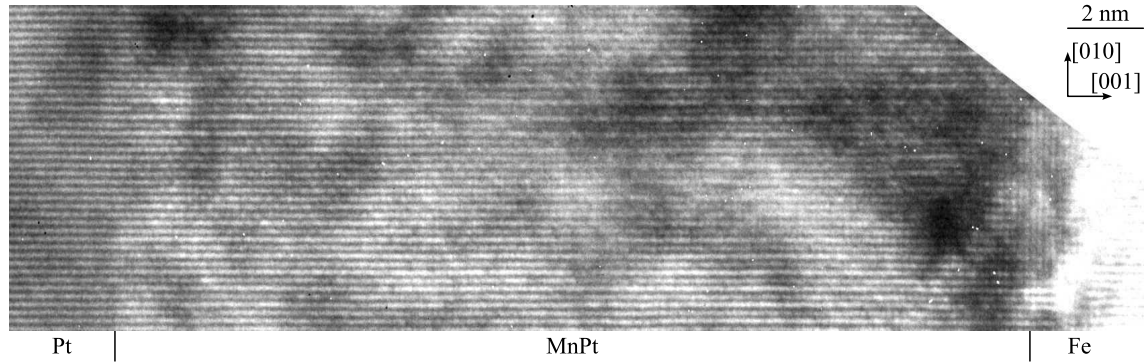


FIG. 2.11 – Image en haute résolution d'un échantillon MnPt, déposé sur substrat Pt à température ambiante, montrant un contraste de surstructure le long d'une colonne de croissance allant du substrat de platine à la couche de fer.

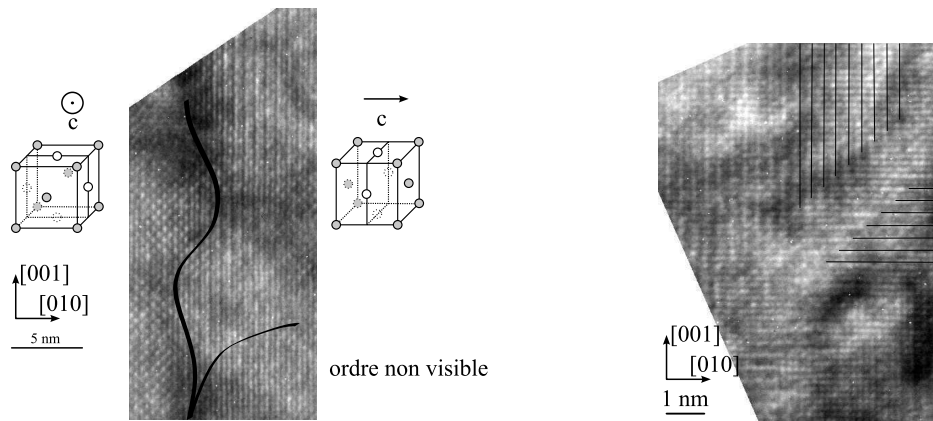


FIG. 2.12 – Images en haute résolution d'une coupe d'un échantillon de MnPt, déposé sur Pt à température ambiante (à gauche), montrant l'interface entre deux variants planaires. Vue en coupe d'un échantillon déposé à haute température (à droite).

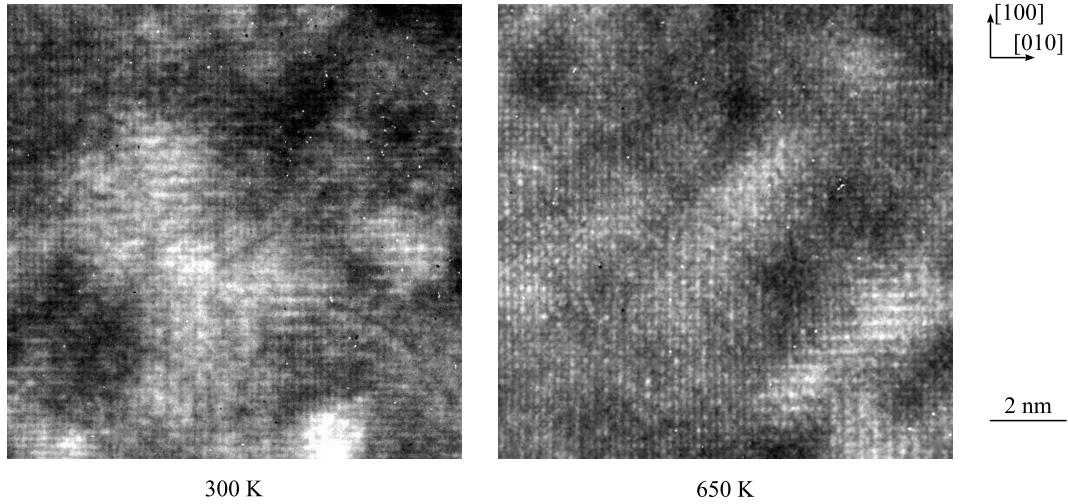


FIG. 2.13 – Images en haute résolution d’une vue plane d’un échantillon de MnPt, déposé sur Pt à température ambiante (à gauche) et d’un échantillon déposé à haute température (à droite). Des zones ordonnées sont visibles.

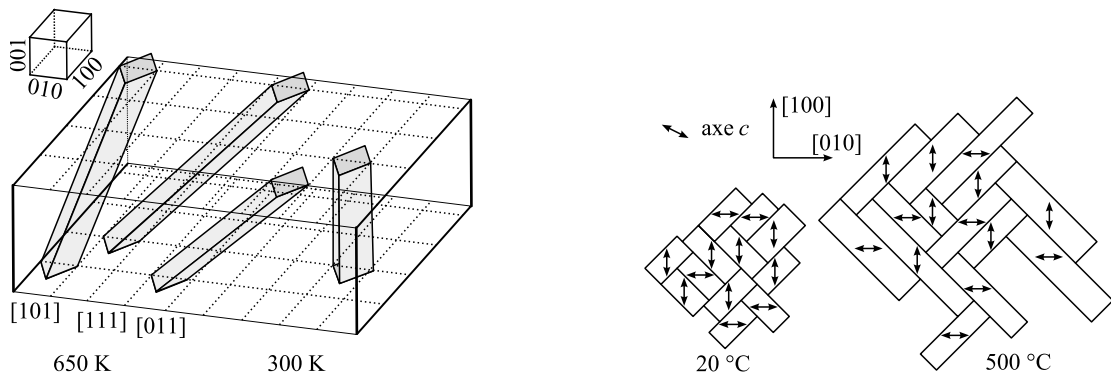


FIG. 2.14 – Schéma interprétatif de la croissance de MnPt : croissance en colonnes et variants planaires. Les flèches représentent la direction de l’axe  $c$ . Dans le cas de l’échantillon déposé à plus haute température, trois types possibles de colonnes de croissance sont représentées. Les échelles ne sont pas respectées.

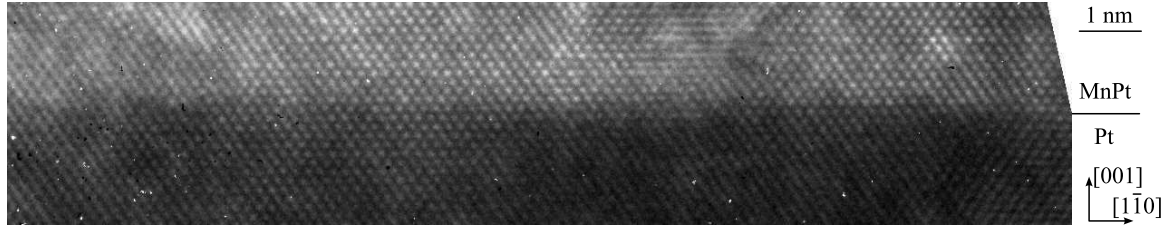


FIG. 2.15 – Observation de microscopie électronique à haute résolution d’une coupe d’un échantillon de MnPt/Pt déposé à température ambiante. La partie supérieure (claire) de l’image montre la couche MnPt, la partie inférieure (sombre) montre la couche de platine.

[51], où la longueur de corrélation latérale, mesurée en microscopie à force atomique, passait de 58 nm à 91 nm lorsque la température de dépôt passait de 200 °C à 300 °C.

Le comportement des dépôts de MnPt en fonction de la température est différent de celui observé dans la littérature pour MnPd. En effet, d’après les résultats obtenus dans la réf. [130], des couches de MnPd/Fe donnent une structure bivariée à température ambiante. En revanche, un dépôt sur un substrat chauffé à 500 °C permet d’obtenir le variant à axe  $c$  perpendiculaire majoritaire. Aux températures intermédiaires, un mélange des trois variants est obtenu, mais un changement abrupt se produit entre 350 °C et 450 °C.

#### 2.1.4 Défauts de croissance dans l’alliage MnPt

L’alliage MnPt ordonné massif présente des paramètres de maille  $a = 0,400$  nm et  $c = 0,36647$  nm [131] (un tableau des paramètres de maille est donné au paragraphe 2.1.8). Or le platine a pour paramètre  $a_{Pt} = 0,392$  nm. Le désaccord de maille dans la direction de l’axe d’anisotropie  $c$  vaut  $\delta = (a_{Pt} - c)/a_{Pt} \simeq 6,5$  %. La croissance bivariée à axe  $c$  dans le plan permet de relaxer la plus grande partie du désaccord de maille. Cependant, les paramètres obtenus n’étant pas identiques à celui du substrat de platine, il doit exister des défauts à l’interface entre Pt et MnPt. Les observations de microscopie ne permettent pas de mettre facilement en évidence cette faible densité de défauts à l’interface Pt/MnPt. Les directions d’observation  $[100]$  et  $[1\bar{1}0]$ , sur une longueur de 150 plans, n’ont pas montré de défauts. La figure 2.15 montre une zone de 100 plans atomiques sans défaut d’interface visible.

Par ailleurs, le recuit effectué sur la couche de Pt avant le dépôt de la couche de MnPt contribue à l’obtention d’une couche de Pt très lisse, et son épaisseur de 45 nm lui permet de relaxer l’intégralité de la contrainte épitaxiale dans la couche de Pt déposée sur MgO.

Des défauts de type coin peuvent être observés, toujours dans la direction d’observation  $[1\bar{1}0]$ . La figure 2.16 illustre deux de ces défauts. Leur densité est faible dans la couche : 5 défauts observés dans une zone d’environ 1 000 nm<sup>2</sup> (figure 2.17). Cette zone d’observation doit correspondre à l’étendue de trois ou quatre variants traversant la couche. Or, compte-tenu du caractère quadratique de la maille, un désaccord de maille de 5 % à 6 % dans les directions de type  $[100]$  (voir les données du tableau 2.4) existe entre les deux variants. La faible densité de défauts observés ne suffit pas à réaliser l’adaptation de paramètre de maille de 5 %. L’adaptation du paramètre est donc réalisée par déformation élastique de la maille.

L’observation de défauts dans la direction  $[1\bar{1}0]$  ne suffit pas à prouver leur présence dans l’échantillon après élaboration. Ces défauts pourraient avoir été introduits par le procédé d’obtention de la lame mince de microscopie électronique, qui peut créer des défauts perpen-

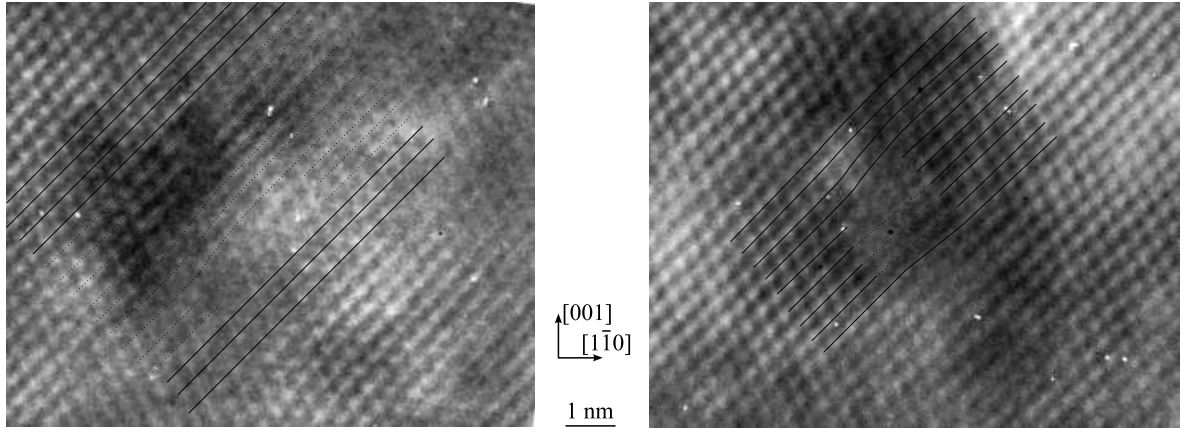


FIG. 2.16 – Défauts d’empilement dans la couche de MnPt, observés en microscopie électronique en transmission à haute résolution. Le défaut se caractérise par l’insertion d’un plan atomique (111) supplémentaire dans l’empilement. La déformation résultante est absorbée en une dizaine de plans.

diculaires à la surface d’observation. Cependant, l’observation de lames minces préparées pour la direction d’observation  $[100]$  ne révèle pas la présence de défauts. Cela permet de conclure que des défauts sont effectivement présents dans la couche et caractérisés par un plan de glissement (111), ce qui est courant pour les structures CFC. Les dislocations les plus favorisées sont celles possédant un vecteur de Burgers selon la direction  $\frac{1}{2}[101]$ . Les observations réalisées sur d’autres alliages de structure  $L1_0$  confirment cette idée [132, 129].

Remarquons enfin que, dans la direction d’observation  $[001]$ , qui correspond à une vue plane, nous n’observons pas de défauts (figure 2.13), ce qui est cohérent avec les remarques précédentes.

### 2.1.5 Parois d’antiphase

Les parois d’antiphase sont un type de défaut particulier pour lequel l’empilement régulier des atomes de deux cristallites voisins présente un décalage (figure 2.18). Il est important de connaître la présence de ces défauts dans le cas de notre alliage magnétique car, du fait du décalage dans la configuration magnétique des deux cristallites, les deux domaines sont magnétiquement indépendants. Ce type de défaut limite donc la taille des domaines magnétiques. Ces défauts peuvent s’observer en microscopie électronique à transmission par la technique du champ sombre (figure 2.7). Au chapitre 4, nous montrerons que la taille structurale des variants est comparable à la longueur de corrélation des domaines magnétiques. Nous pouvons ainsi faire l’hypothèse que les antiphases présentes entre certains cristallites les séparent en domaines magnétiques indépendants.

### 2.1.6 Croissance du fer

La croissance du fer sur la surface de MnPt présente un cas différent de la croissance de MnPt sur le platine : la structure cristalline des deux matériaux n’est pas la même, l’une est cubique centrée, l’autre quadratique bivrée construite sur une structure cubique à face centrées. L’épitaxie de la couche de fer sur MnPt se réalise néanmoins, comme le montrent les

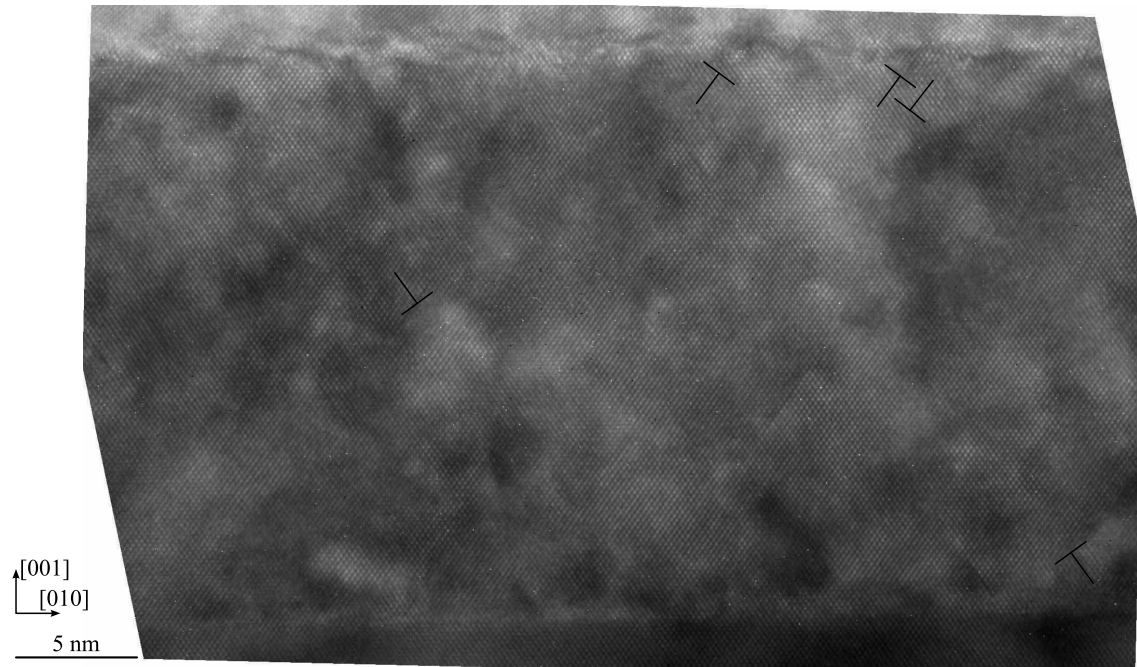


FIG. 2.17 – Observation de la localisation de défauts au sein de la couche de MnPt, dans le cas d'un dépôt de MnPt sur platine réalisé à température ambiante.

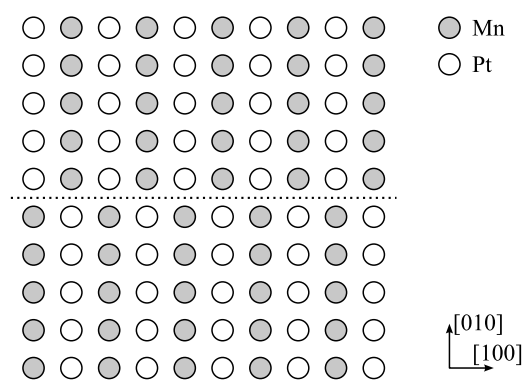


FIG. 2.18 – Illustration d'une antiphase. La ligne pointillée souligne la position de la paroi entre les deux cristallites déphasés.



clichés de diffraction d'électrons en incidence rasante (figure 2.20), grâce à une rotation de  $\pi/4$  de la structure cubique centrée du fer (figure 2.19). La relation d'épitaxie qui s'ensuit, définie par Fe [100] // MnPt [110] et Fe [001] // MnPt [001] permet d'obtenir un faible désaccord de maille. Les paramètres de maille dans le plan de la structure MnPt sont en effet plus proches de  $d_{\text{Fe}}^{[100]} \times \sqrt{2} \simeq 0,407$  nm avec  $d_{\text{Fe}}^{[100]} \simeq 0,288$  nm<sup>2</sup>. Il reste ainsi 6,5 % de désaccord de maille à accommoder. Cela se réalisera *via* l'introduction de défauts à l'interface entre les deux couches.

L'observation en microscopie électronique à haute résolution révèle l'existence de défauts d'interface dus au désaccord de paramètre de maille. Plus particulièrement, nous avons observé des dislocations coin qui se caractérisent par l'omission d'un plan atomique dans le fer par rapport au MnPt (figure 2.22). Dans la direction d'observation MgO [100], ces plans omis sont (010) (dans la nomenclature de la maille de fer, il s'agit de plans  $(\bar{1}10)$ ). Dans la direction d'observation [110], il s'agit de plans (101) par rapport à la couche de fer. Cela ne permet pas de conclure sur l'orientation des défauts dans la couche de fer, car il n'est pas possible de savoir si les observations dans les deux directions MgO [100] et MgO [110] correspondent au même défaut ou à deux types de défauts différents.

Les centres de ces dislocations sont espacés de 10 nm  $\pm$  4 nm (figure 2.23). La dispersion en espacement de ces défauts provient de la structure bivariée de l'alliage MnPt. La couche de fer est en effet déposée sur une surface sous-jacente présentant sur son étendue deux types de paramètres de maille dans le plan répartis sur la surface.

Un autre argument tendant à expliquer la dispersion des cœurs de dislocations est la rugosité de la surface de MnPt sur laquelle croît la couche de Fe. Les clichés de microscopie révèlent que l'interface présente une « épaisseur » pic à pic de l'ordre du nanomètre (figure 2.21). Cette rugosité est probablement la conséquence de la croissance à température ambiante de l'alliage MnPt dans le cas des échantillons sur lesquels a été déposée la couche de fer.

La couche de fer ne marque pas de rotation prononcée autour d'axes dans le plan de sa couche, au-delà d'une zone perturbée par l'interface avec l'alliage MnPt (figure 2.21). Il n'est cependant pas possible, dans le cas d'une observation de microscopie électronique à transmission, d'observer nettement et simultanément les plans atomiques de MnPt et de Fe. La figure 2.21 montre le flou sur les plans (001) du fer, plans pourtant visibles dans la partie MnPt. Cela signifie que la couche de fer est légèrement désorientée par rapport à la couche de MnPt, avec un axe de rotation dans le plan de la figure.

### 2.1.7 Population de variants

Dans l'analyse qui précède, nous avons mis en évidence la structure bicristalline de l'alliage MnPt. Cependant, cette analyse par microscopie électronique donne une information essentiellement locale. Il serait intéressant d'autre part d'obtenir une information à plus grande échelle sur la population des deux variants. Pour cela, nous avons étudié les échantillons par diffraction des rayons x.

Si la surface du substrat présente une symétrie cubique, il n'existe aucune raison pour que les populations des deux variants diffèrent. En effet, les deux populations se forment à l'échelle microscopique en raison d'événements aléatoires donnant naissance aux deux orientations avec la même probabilité. Mais si une brisure de symétrie intervient au niveau microscopique, par

---

<sup>2</sup>Les couches de fer déposées dans ce travail sont de faible épaisseur, de 5 nm à 10 nm, ce qui rend la détermination de leur paramètre de maille difficilement accessible aux mesures de diffraction des rayons x effectuées au laboratoire.

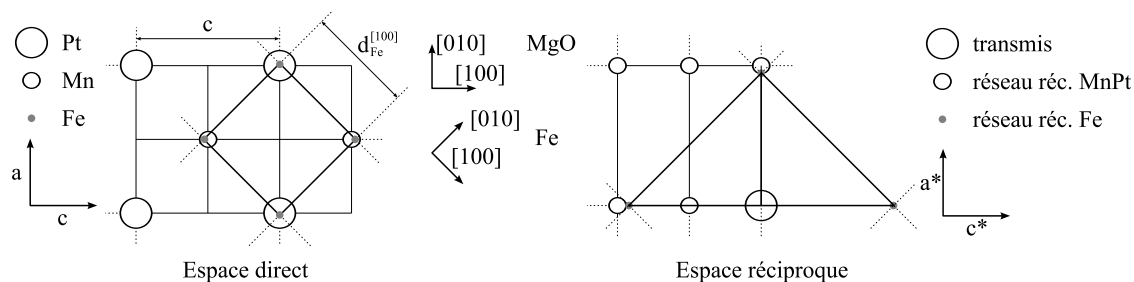


FIG. 2.19 – Épitaxie d'une structure cubique centrée au-dessus d'une surface  $L1_0$  (un seul variant) : illustration de la position des colonnes atomiques (vues « de dessus ») et de la figure correspondante de l'espace réciproque.

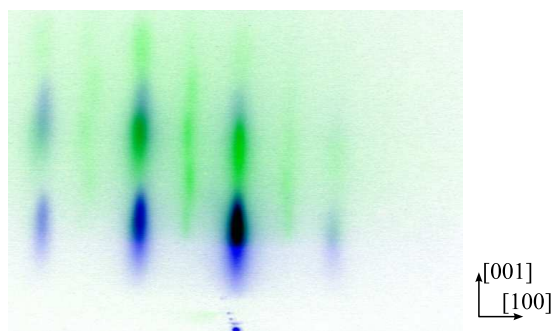


FIG. 2.20 – Superposition d'une image de diffraction d'électrons en incidence rasante d'une surface de MnPt déposée à température ambiante (encre verte) et de la surface de Fe déposée au-dessus (encre bleue). Les deux images ont été obtenues successivement lors du dépôt d'une couche Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100).

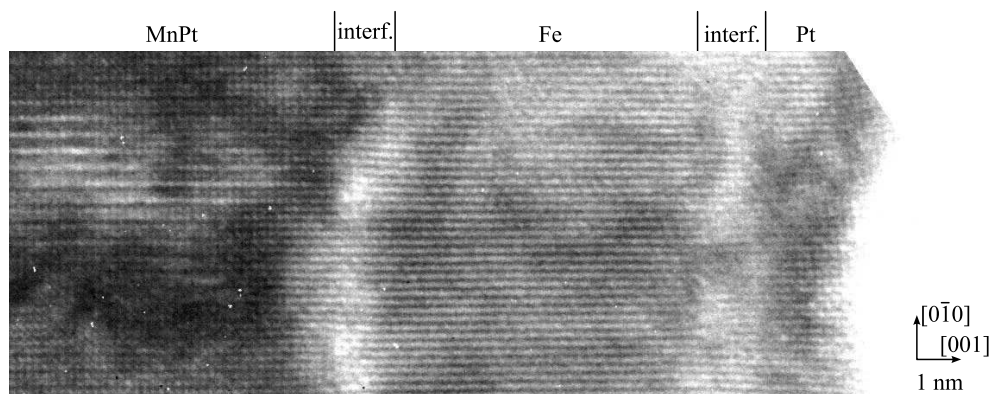


FIG. 2.21 – Image de microscopie électronique en transmission en haute résolution permettant d'observer l'interface entre la couche de MnPt et la couche de Fe.



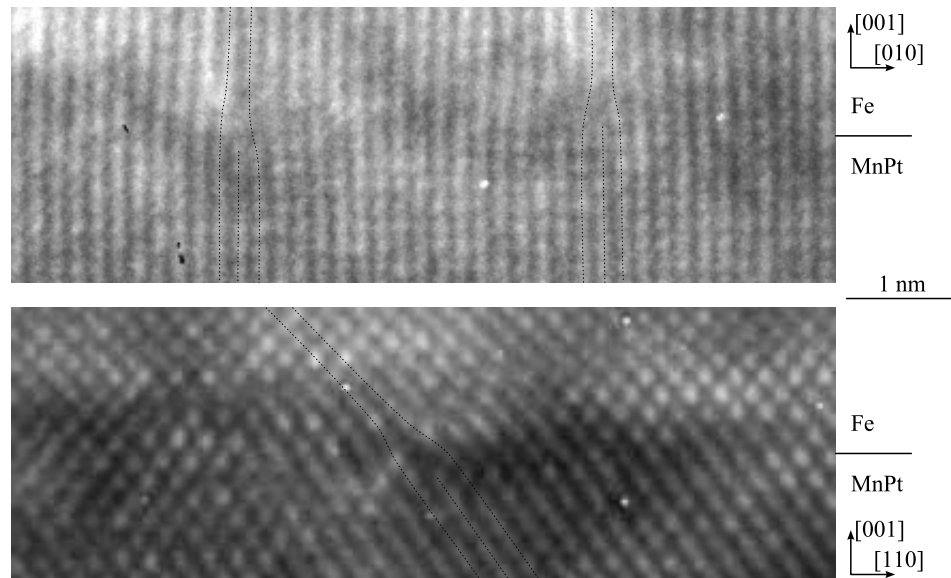


FIG. 2.22 – Image de microscopie électronique en transmission en haute résolution permettant d’observer deux défauts d’interface Fe/MnPt. Le prolongement des plans atomiques est souligné.

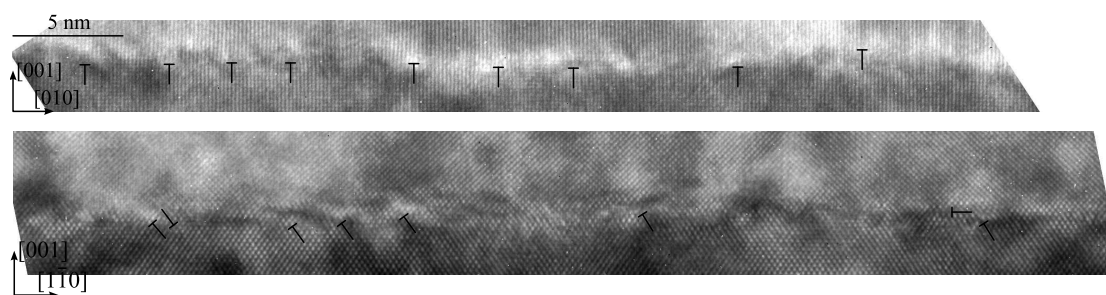


FIG. 2.23 – Image de microscopie électronique en transmission en haute résolution permettant d’observer de la localisation de défauts d’épitaxie à l’interface entre l’alliage MnPt et la couche de fer.

exemple en raison d'une orientation vicinale du substrat, alors un des variants peut être favorisé. De tels résultats ont déjà été obtenus sur certains systèmes. Ainsi, sur un substrat  $\text{SrTiO}_3$  (011),  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  s'épitaie de façon bivariée, mais l'emploi d'une surface vicinale (moins  $1^\circ$  du plan (011)) permet d'obtenir un seul des deux variants [133]. Cependant, l'utilisation d'une surface vicinale ne permet pas systématiquement d'obtenir une structure monovariée : une surface vicinale peut conduire à une relaxation des contraintes sur les bords de marche, tout en préservant la structure initiale [122]. Dans le cas de MnPt, l'utilisation d'une surface  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $1\bar{1}02$ ) conduit ainsi à une structure toujours bivariée [117].

De façon à déterminer le rapport des populations dans les échantillons élaborés au laboratoire, nous avons étudié l'intensité des faisceaux diffractés spécifiques de chaque variant. L'étude de l'intensité de différents pics de surstructure (un exemple sera donné plus loin, figure 2.30) montre que les populations des deux variants sont du même ordre de grandeur. En effet, les intensités des pics 102 et 104 (attribuables à l'un des variants), et des pics 103 et 303 (attribuables à l'autre variant) s'alignent une fois les mesures corrigées. Cependant, la précision de cette méthode dépend étroitement des corrections liées aux différents angles de mesure. Aussi avons-nous choisi, pour obtenir une plus grande précision, d'étudier un même pic pour deux orientations de l'échantillon qui permettent d'accéder au signal des deux variants dans des conditions de mesure comparables. L'inconvénient de cette méthode est la modification manuelle l'orientation de l'échantillon, ce qui peut toujours être la source d'incertitudes numériques liées aux différentes conditions d'éclairement de l'échantillon. Pour pallier ce problème, nous avons considéré non pas l'intensité absolue du pic mesuré mais le rapport d'intensité entre le pic de surstructure caractéristique du variant étudié et observé dans les mêmes conditions le pic fondamental (correspondant aux deux variants).

Nous avons ainsi choisi le pic de diffraction 102 spécifique des variants planaires, et nous avons mesuré son intensité lorsque l'échantillon était placé dans deux directions perpendiculaires (figure 2.24). Pour que les mesures soient comparables, l'axe de rotation de l'échantillon doit être rigoureusement perpendiculaire à sa surface. L'alignement de la tête goniométrique sur laquelle est placé l'échantillon a été réalisé en s'aidant de la réflexion d'un faisceau laser sur l'échantillon. Cependant, malgré cette précaution, les conditions d'éclairement peuvent ne pas être exactement les mêmes. De façon à nous affranchir des différences d'éclairement de l'échantillon dans les deux directions, l'intensité mesurée est ramenée à l'intensité d'un pic fondamental, dont la contribution provient des deux variants. Nous avons donc mesuré les rapports d'intensité  $r_1 = I_{102}/I_{002}$  et  $r_2 = I_{012}/I_{002}$ . De façon à mesurer au mieux l'intensité du pic MnPt 002 en étant affranchi du pic du platine, nous avons utilisé des couches MnPt déposées directement sur substrat MgO. La mesure étant alors faite sur un substrat différent, les résultats doivent être interprétés avec précaution. Cependant, nous avons des raisons de penser que le résultat obtenu est également valable pour les échantillons déposés sur substrat de Pt/MgO. En effet, nous savons déjà que la population des deux variants est proche. D'autre part, la couche de Pt est elle-même déposée sur MgO, et sa structure cristalline CFC comme son paramètre de maille sont proches de ceux de l'alliage MnPt. Nous faisons donc l'hypothèse que les comportements de Pt et de MnPt sur une surface de MgO seront les mêmes.

Le calcul de l'intégrale des pics a été réalisé une fois les mesures traduites en unités de l'espace réciproque. L'intensité du pic 002 a été calculée en utilisant la largeur intégrale de la mesure effectuée dans la direction  $\omega$ . Cela repose sur l'hypothèse que, pour les petites excursions angulaires, une mesure effectuée selon l'angle  $\omega$  est assimilable à une mesure faite selon la direction  $q_{\text{plan}}$  de l'espace réciproque. Les pics 102 et 012 sont ajustés à un modèle

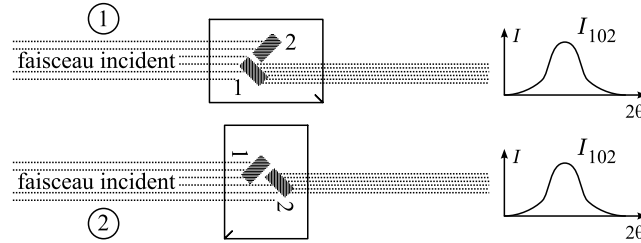


FIG. 2.24 – Illustration de la méthode expérimentale pour la comparaison des populations des deux variants.

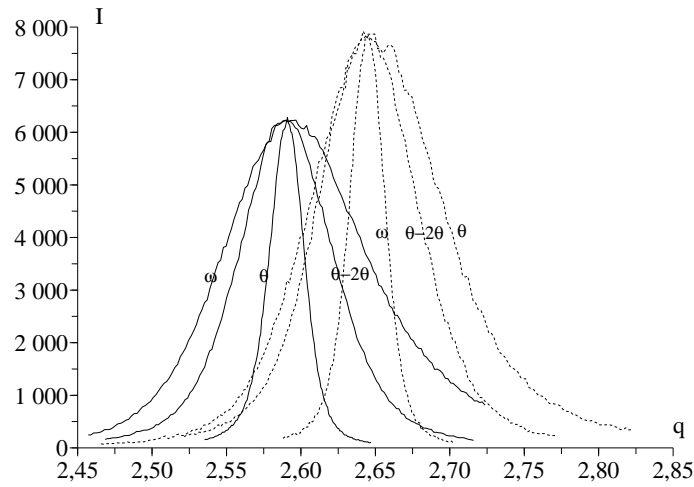


FIG. 2.25 – Mesure expérimentale des pics 102 et 012, en intensité normée par celle du pic fondamental 002. Les mesures de gauche (trait plein) et de droite (pointillés) correspondent respectivement aux pics 102 et 012. Les différentes courbes correspondent aux mesures  $\theta - 2\theta$ ,  $\omega$  et  $\theta$ . L'abscisse représente la composante planaire du vecteur de diffusion ( $\text{nm}^{-1}$ ). La mesure a été faite sur un échantillon Pt (3 nm)/MnPt (30 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). Le décalage d'abscisse entre les deux courbes, dans la direction  $q_{//}$ , entre les deux pics, correspond à un désalignement de l'échantillon qui n'a pu être compensé sur l'appareil de diffraction utilisé, qui n'est équipé que de deux axes de rotation.

permettant de considérer un intermédiaire entre un modèle gaussien et lorentzien.

$$I = b + \frac{a}{(1 + \sigma_{11}(x - x_0)^2 + \sigma_{22}(y - y_0)^2 + \sigma_{12}(x - x_0)(y - y_0))^n} \quad (2.1)$$

La proportion du variant 1 s'écrit alors  $p_1 = r_1/(r_1 + r_2)$ , où  $r_1$  et  $r_2$  sont les intensités des pics 102 et 012 (normées par la mesure du pic 002 dans chacune des deux conditions de mesure). Les mesures réalisées sont présentées sur la figure 2.25. Elles aboutissent aux proportions 46 % et 54 %. Ces proportions sont suffisamment proches de 50 % pour que nous puissions considérer que les deux variants sont en proportions identiques au vu des incertitudes de la mesure. Cet équilibre des deux proportions nous permet de conclure que le substrat utilisé n'induit pas d'anisotropie dans la structure, et que nous pouvons étudier les propriétés magnétiques sans avoir à tenir compte d'une anisotropie magnétique induite par un déséquilibre des populations de variants.

### 2.1.8 Diffraction des rayons x et paramètres de maille

La mesure des paramètres de maille a été réalisée par diffraction des rayons x. La position des pics de diffraction dans le cas d'échantillons typiques est donnée au tableau 2.3 et les courbes correspondantes sont tracées dans les figures 2.26 et 2.27. Les mesures pour un vecteur de diffusion  $q$  perpendiculaire à la couche montre la présence de pics de diffraction 002 et 004 pour le MgO, la couche tampon de Pt et l'alliage MnPt. La couche de mouillage de chrome n'est pas visible. Un pic de très faible intensité est visible à la position 001 en échelle logarithmique. Il peut correspondre à la présence de traces du variant d'axe  $c$  perpendiculaire à la couche. Il peut aussi correspondre à des traces de la structure  $L1_2$  MnPt<sub>3</sub> qui pourrait se former à l'interface avec le platine. L'aspect des mesures n'évolue que peu avec la température de dépôt. Compte-tenu de la mise en ordre avec un axe  $c$  dans le plan de la couche, l'ordre chimique n'est appréciable que sur des pics de diffraction dont le vecteur de diffusion comporte une composante planaire. L'épitaxie avec le platine est réalisée avec un désaccord de maille très faible, les pics fondamentaux du platine et de l'alliage MnPt sont très rapprochés.

Les paramètres de maille (figure 2.28 et tableau 2.4) traduisent une information sur la relaxation de la maille aussi bien que sur son état d'ordre. Dans le cas de nos alliages codéposés, l'épitaxie sur la couche de platine et la structure bivariée imposent la valeur des paramètres de maille. Aussi les paramètres de maille n'évoluent-ils pas beaucoup avec la température de dépôt. Le rapport  $c/a$  caractéristique de la maille quadratique tend à s'écarter de 1 lorsque la température de dépôt augmente, tendance corollaire d'un meilleur ordre chimique.

### 2.1.9 Température et ordre chimique

L'ordre chimique à longue distance des alliages ordonnés comme l'alliage MnPt, de type  $L1_0$ , conditionne leurs propriétés magnétiques (voir paragraphe 1.2.1). C'est pourquoi la connaissance de la morphologie des domaines ordonnés n'est pas suffisante pour comprendre le matériau ; il faut également quantifier l'ordre présent dans les zones ordonnées. Cette quantification se fait par le paramètre  $S$ . Considérons la structure  $L1_0$ . Celle-ci comporte deux sous-réseaux. Nous définissons ainsi le sous réseau  $\alpha$ , associé au manganèse, et le sous-réseau  $\beta$ , associé au platine. Dans ces conditions, nous pouvons définir le paramètre d'ordre à longue distance  $S$  comme le taux d'occupation moyen du manganèse sur le sous-réseau  $\alpha$ .

Les images de microscopie électronique en transmission ne permettent pas de quantifier aisément l'ordre chimique [134]. D'autre part, la microscopie électronique fournit une mesure

pic	$2\theta$	$\omega$	$I \text{ (s}^{-1}\text{)}$	$l_{\theta-2\theta}$	$l_{\omega}$	$l_{2\theta}$
002	$54,3^\circ$	$26,574^\circ$	45 000	$0,62^\circ$	$0,74^\circ$	$0,56^\circ$
004	$131,61^\circ$	$65,229^\circ$	3 850	$1,44^\circ$	$0,71^\circ$	$1,00^\circ$
102	$61,9^\circ$	$3,84^\circ$	1 130	$0,74^\circ$	$1,13^\circ$	$0,97^\circ$
$\bar{1}02$	$62,29^\circ$	$57,955^\circ$	77	$0,81^\circ$	$1,19^\circ$	$0,61^\circ$
103	$92,89^\circ$	$27,885^\circ$	100	$0,99^\circ$	$1,11^\circ$	$1,15^\circ$
$\bar{1}03$	$92,82^\circ$	$63,97^\circ$	47	$0,98^\circ$	$1,15^\circ$	$0,69^\circ$
104	$142,89^\circ$	$56,585^\circ$	49	$2,46^\circ$	$1,05^\circ$	$2,06^\circ$
$\bar{1}04$	$142,89^\circ$	$85,335^\circ$	36	$2,38^\circ$	$1,07^\circ$	$1,71^\circ$
303	$148,92^\circ$	$29,59^\circ$	58	$4,43^\circ$	$0,79^\circ$	$1,84^\circ$

TAB. 2.3 – Position et largeurs totales à mi-hauteur des pics de diffraction de rayons x, pour un échantillon de Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) codéposé à température ambiante. L'échantillon est mesuré sur un diffractomètre à deux axes de rotation équipé d'une anode au cobalt. La largeur en  $\omega$  correspond à une mesure où seul l'axe  $\omega$  de l'échantillon est modifié. Cette largeur est fournie en unités de l'angle  $\omega$ . La largeur en  $\theta$  correspond à une mesure où seul l'angle  $2\theta$  du détecteur est modifié. Cette largeur est fournie en unités de  $2\theta$ . La largeur selon  $\theta - 2\theta$  correspond à une mesure radiale dans l'espace réciproque. Cette largeur est fournie en unités de  $2\theta$ . Tous les angles sont en degrés. L'intensité indiquée correspond au maximum du pic, en coups par seconde, et doit n'être considéré qu'à titre indicatif. Les données des pics 002 et 004 correspondent au maximum du pic comprenant à la fois l'alliage MnPt et le platine.

alliage	$a \text{ (nm)}$	$b \text{ (nm)} (\perp)$	$c \text{ (nm)}$	$c/a$	S
codép. 300 K	0,3988	0,390	0,381	0,955	0,61
codép. 450 K	0,400	0,390	0,379	0,950	0,57
codép. 620 K	0,401	0,392	0,377	0,940	0,76
massif, réf. [131]	0,400	0,400	0,366 47	0,916	$\approx 1$

TAB. 2.4 – Paramètres de maille et paramètre d'ordre chimique pour des codépôts réalisés à plusieurs températures et rappel des valeurs de la littérature. Pour mémoire, le paramètre de maille du platine vaut 0,392 nm. Les paramètres  $a$  et  $c$  correspondent à une distance dans le plan de la couche, le paramètre  $b$  correspond à la direction perpendiculaire au plan de la couche.

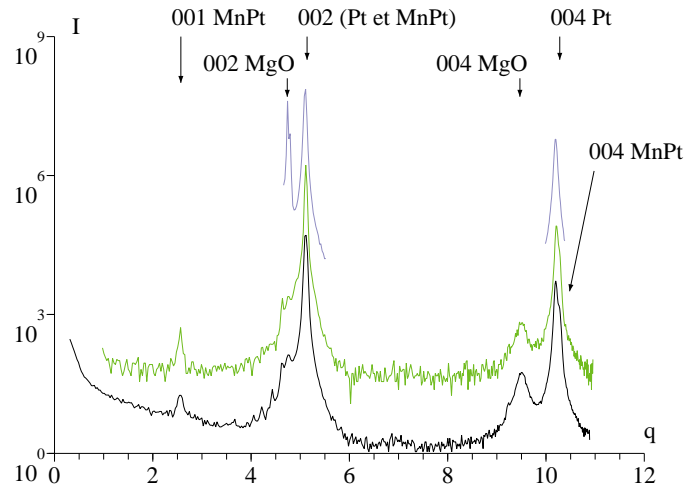


FIG. 2.26 – Courbes de diffraction des rayons X correspondant à un vecteur de diffusion perpendiculaire à la couche, pour trois dépôts. Les trois courbes superposées correspondent, de bas en haut, à la température ambiante, à un dépôt à 150 °C et à un dépôt à 350 °C. Les échantillons étudiés ont pour composition Pt (3 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). Le pic noté 001 MnPt correspond soit à une part très minoritaire du variant d'axe  $c$  perpendiculaire au plan, soit à la formation d'une phase  $\text{MnPt}_3$  aux interfaces entre MnPt et le platine. Le pic 002 du tampon de platine est, sur ces graphes, difficile à discerner de celui de l'alliage. Le pic 004 MnPt de l'alliage est visible comme un épaulement du pic 004 Pt. Ces deux derniers pics seront détaillés sur la figure 2.27. Les pics du substrat sont fortement atténués en raison d'un léger désalignement (de l'ordre de  $0,1^\circ$ ) entre l'orientation de la couche étudiée et l'orientation du substrat. Le pic 002 du substrat de MgO présente, à sa gauche, un pic secondaire lié à la raie  $K_\beta$  du Cobalt. Les axes des abscisses est en unités de l'espace réciproque  $q = \sin \theta / \lambda$  ( $\text{nm}^{-1}$ ). Les ordonnées sont en unité arbitraire d'intensité.

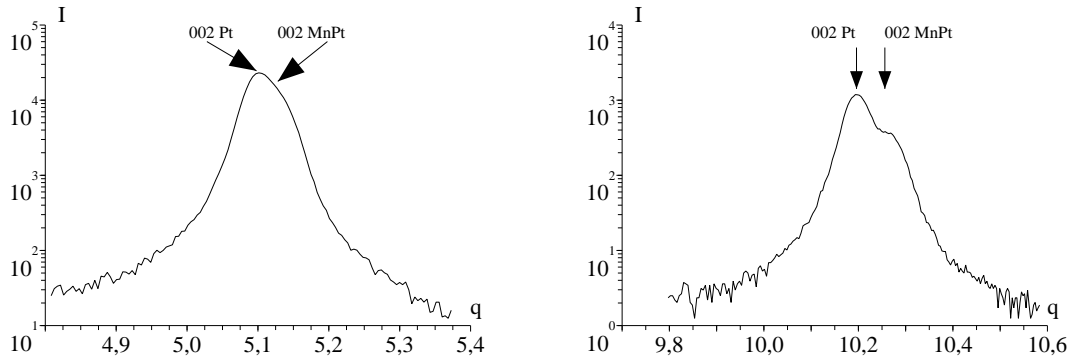


FIG. 2.27 – Agrandissements de la figure 2.26 correspondant aux pics 002 (à gauche) et 004 (à droite). Le pic 004 montre un dédoublement qui traduit la différence de paramètre de maille entre le platine (pic situé à gauche) et l’alliage de MnPt (pic moins intense à droite du pic du platine). Le pic 002 montre le même effet, mais le pic du MnPt est trop proche du pic du platine pour être séparable, et sa présence se caractérise par un épaulement à droite du pic du platine. Les axes des abscisses est en unités de l’espace réciproque ( $\text{nm}^{-1}$ ), les ordonnées sont en unité arbitraire d’intensité. Les conventions sont les mêmes que sur la figure 2.26.

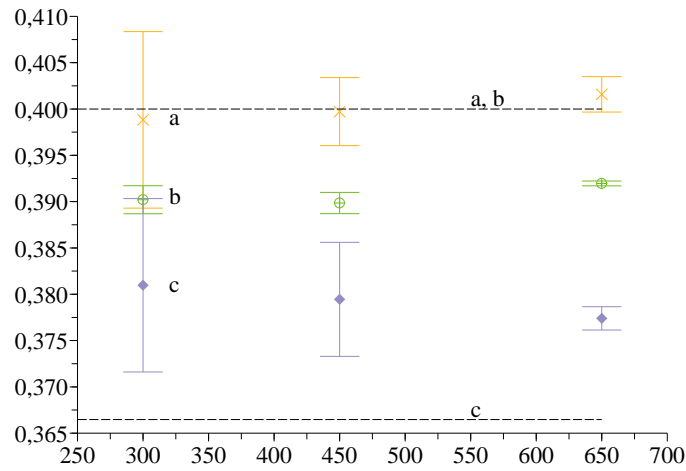


FIG. 2.28 – Évolution des paramètres de maille (nm) des codépôts avec la température (K) pour les échantillons caractérisés sur la figure 2.25. La barre permet d’apprécier la dispersion des données autour de la valeur moyenne. Les paramètres sont nommés  $a$ ,  $b$ ,  $c$  en valeurs décroissantes et sont respectivement représentés par une croix (jaune), un cercle (vert) et un losange (bleu). En pointillés, sont rappelées les valeurs des paramètres de maille pour l’alliage massif. Dans le cas des couches minces étudiées au laboratoire, le paramètre  $b$  correspond à la direction perpendiculaire à la couche.

locale, et l'extrapolation à l'ensemble de l'échantillon n'est pas aisée. La microscopie électronique a cependant été utilisée dans le cas de la mesure du paramètre d'ordre de nanoparticules [135]. D'autre part, plusieurs mécanismes sont à prendre en compte dans l'interprétation quantitative des images de microscopie électronique. Ces mécanismes sont difficiles à quantifier. Ainsi, dans le cas d'une observation de diffraction électronique, l'expression de l'intensité électronique diffractée prend en compte de nombreux mécanismes comme les diffusions multiples. Dans le cas d'une observation en haute résolution dans l'espace direct, le contraste d'ordre chimique évolue de façon continue avec le paramètre d'ordre sans changement qualitatif [136]. Or, le contraste d'une image de microscopie électronique en transmission en haute résolution varie également en fonction des conditions d'observation, et seul un changement qualitatif aurait permis de distinguer entre zones ordonnées et moins ordonnées. De plus, la comparaison entre les images observées en microscopie et des images simulées est contraignante et ne permet pas de quantifier très précisément le paramètre d'ordre. Nous avons donc eu recours à une autre technique que la microscopie : la diffraction des rayons x. Cette technique est bien adaptée à la quantification du paramètre d'ordre. En effet, l'intensité diffractée peut être mesurée de façon linéaire sur 7 ordres de grandeur avec un équipement de laboratoire et les corrections à apporter au signal sont connues. La méthode utilisée pour la mesure du paramètre d'ordre est détaillée à l'annexe B.

Les calculs montrent un ordre chimique assez élevé pour les dépôts réalisés à température ambiante (tableau 2.4), en augmentation pour la plus haute température de dépôt. Un point plus particulier est le résultat obtenu à température intermédiaire. L'ordre chimique mesuré est plutôt faible, en léger recul par rapport à l'ordre observé pour les dépôts réalisés à température ambiante. Les ajustements utilisés pour le calcul sont représentés sur les figures 2.29 et 2.30.

### 2.1.10 En résumé

L'étude structurale menée jusqu'à présent permet de conclure sur les points suivants :

- La croissance de la multicouche de Fe/MnPt/Pt est épitaxiale ;
- L'alliage MnPt adopte une structure ordonnée  $L1_0$  caractérisée par un axe  $c$  préférentiellement dans le plan de la couche, selon deux orientations perpendiculaires entre elles ;
- Le volume ordonné semble occuper la majeure partie de la couche ;
- Les deux variants ainsi obtenus ont une taille de l'ordre de la dizaine de nanomètres et ont entre eux des parois orientées à  $\pi/4$  de l'axe  $c$ , dans le plan de la couche.
- L'interface entre la couche de MnPt et la couche de fer comporte des défauts liés à l'adaptation du paramètre de maille entre les deux matériaux.

Les résultats de cette étude structurale nous conduisent à préférer les échantillons de MnPt élaborés à température ambiante. En effet, ces échantillons présentent un ordre chimique élevé. Les dépôts à une température plus élevée peuvent présenter un ordre chimique plus important, mais montrent la présence du variant d'axe  $c$  perpendiculaire, dont la présence n'est pas souhaitée pour l'étude du système à variants planaires.

## 2.2 Propriétés magnétiques

L'alliage MnPt bicristallin présente des propriétés magnétiques tout à fait particulières. Dans cette partie, nous aborderons trois caractéristiques : l'aspect des cycles d'hystérésis, le mode de renversement de l'aimantation et les fluctuations magnétiques.



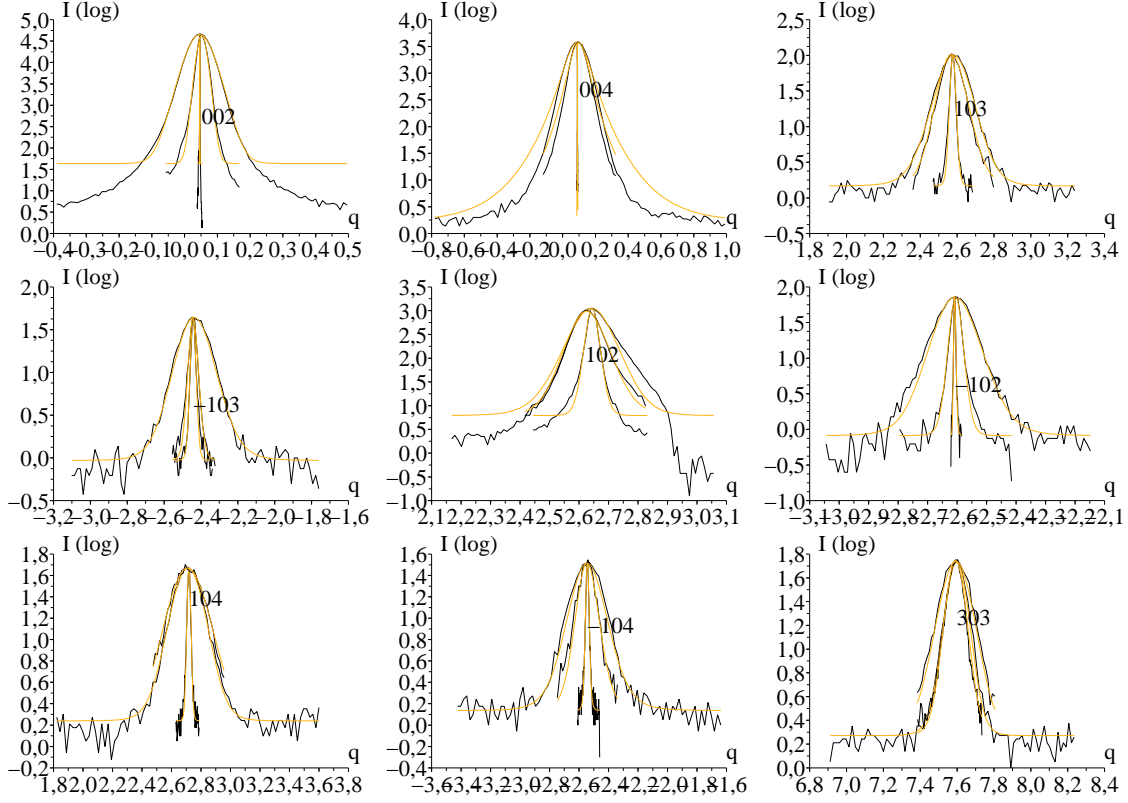


FIG. 2.29 – Mesures effectuées sur différents pics correspondant d'un échantillon Pt (3 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100), pour lequel la couche d'alliage a été déposée à température ambiante. En trait sombre, mesures expérimentales. En trait clair, jaune, ajustements utilisant le modèle donné au paragraphe 2.1.7. Les ordonnées sont en coups par seconde, sur échelle logarithmique. Les abscisses représentent la composante planaire du vecteur de diffusion et sont en unités  $q = \sin \theta / \lambda$  de l'espace réciproque, en  $\text{nm}^{-1}$ . Les largeurs apparentes des courbes s'interprètent en tenant compte de la projection de la direction de mesure sur l'axe  $q//$ . Sur tous les graphes, la courbe d'extension angulaire la plus grande correspond à une mesure effectuée dans la direction  $\omega$ . La courbe la plus fine des deux autres correspond à une mesure  $\theta - 2\theta$ , la dernière courbe correspond à une mesure  $\theta$ .

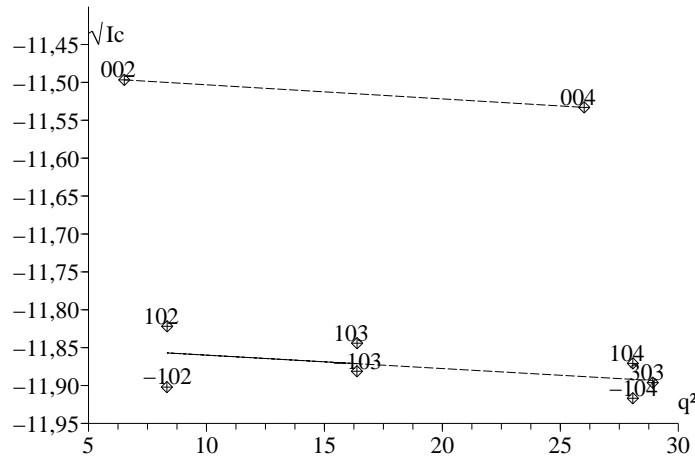


FIG. 2.30 – Régression linéaire permettant d'évaluer le paramètre d'ordre, dans le cas de l'échantillon étudié sur la figure 2.29. L'ordonnée donne, en échelle logarithmique,  $\sqrt{I_c}$  où  $I_c$  est une intensité corrigée définie à l'annexe B. L'abscisse représente  $q^2$  en nm<sup>-2</sup>.

### 2.2.1 Aspect des cycles d'hystérésis

Les cycles d'hystérésis obtenus sur les échantillons étudiés dans ce travail présentent la particularité de ne pas être symétriques, c'est-à-dire que la branche en champ croissant du cycle d'hystérésis n'a pas la même forme que la branche en champ décroissant. Le mode de renversement semble cependant être le même sur les deux branches du cycle d'hystérésis (voir plus loin, paragraphe 2.2.4). Cela n'est cependant pas contradictoire et des observations de même nature ont déjà été rapportées dans la littérature. Présentons maintenant quelques résultats publiés montrant de tels cycles.

Des renversements de l'aimantation en deux étapes ont été obtenus expérimentalement dans le système Co/NiMn et reproduits numériquement par un retournement cohérent d'aimantation prenant en compte une composante d'ordre 4 pour le ferromagnétique, une composante d'ordre 2 et une composante d'ordre 1 pour l'antiferromagnétique [137]. L'asymétrie est obtenue pour différents angles d'application du champ lors de la mesure du cycle d'hystérésis, et les auteurs relient son existence au rapport des anisotropies d'ordre 2 et d'ordre 4, c'est-à-dire à la compétition entre l'anisotropie magnétocristalline du ferromagnétique et celle de l'antiferromagnétique.

Plusieurs autres auteurs ont noté l'existence de mécanismes différents sur les deux branches du cycle d'hystérésis. Cela a par exemple été observé dans le cas d'un antiferromagnétique à variants [59].

Pour obtenir de tels résultats, certains auteurs notent l'importance de la qualité structurale [138] ; l'effet d'asymétrie de retournement n'est présent que pour les échantillons présentant une largeur de pic inférieure à 1,9°. D'autres auteurs soulignent également l'importance que joue l'anisotropie de l'antiferromagnétique dans le type de retournement mis en jeu, grâce à une comparaison des résultats obtenus sur deux systèmes présentant des anisotropies différentes, Fe/FeF<sub>2</sub> et Fe/MnF<sub>2</sub> [139].

Cependant, il a également été montré qu'une asymétrie de forme entre les deux branches d'un cycle d'hystérésis peut être obtenue sans avoir besoin de faire référence à des mécanismes complexes. Des couches polycristallines dans lesquelles existe un couplage d'échange peuvent présenter une telle asymétrie, simplement engendrée par le décalage de l'astroïde repérant les retournements d'aimantation [140].

Une asymétrie dans la forme des cycles a également été obtenue en fonction de la direction de recuit sous champ et de la température de mesure [51], ce résultat étant interprété par les auteurs comme lié à une rotation, difficile à quantifier, de la direction de l'axe de facile aimantation du ferromagnétique Fe comme conséquence du couplage d'échange.

### 2.2.2 Mesures du couplage d'échange

Les échantillons Fe/MnPt, une fois recuits sous champ selon la procédure expliquée à l'annexe A.4, ont été étudiés par effet Kerr magnéto-optique dans l'objectif d'obtenir leurs cycles d'hystérésis. Les mesures révèlent un décalage de l'ordre de 8 mT. Cependant, le couplage d'échange présent dans la couche ne conduit pas seulement à un décalage, la forme du cycle est modifiée (figure 2.32). Cette modification de forme dépend de l'orientation relative de deux vecteurs : la direction du champ de décalage imposé lors du recuit sous champ et la direction du champ de mesure.

- Lorsque le champ de mesure est appliqué parallèlement à la direction du champ appliqué lors du recuit, le cycle est décalé dans la direction des champs négatifs, conformément à l'interprétation intuitive donnée sur la figure 1.1.
- Lorsque ces deux directions sont différentes, l'une ou l'autre branche du cycle d'hystérésis (selon l'angle choisi) présente une étape de difficile saturation.
- Cas particulier, lorsque la direction de l'angle de mesure est perpendiculaire à la direction du champ appliqué lors du recuit, le cycle est à nouveau symétrique, ce qui se comprend du fait de la symétrie du système par rapport à la direction du champ appliqué lors du recuit. Cependant, pour un petit désaccord d'angle avec cette direction, une importante asymétrie du cycle d'hystérésis est observée (figure 2.31).

Définissons le champ de décalage comme la demi-somme algébrique des deux champs d'annulation de l'aimantation, et le champ coercitif comme leur demi-différence. L'étude systématique de ces champs en fonction de l'angle du champ appliqué lors de la mesure montre l'existence de deux axes de symétrie d'ordre 2 (figure 2.33). Cette symétrie se caractérise par la présence d'axes de facile aimantation, selon lesquels le champ coercitif est plus élevé et le renversement de l'aimantation plus brutal (cycle « carré »). Cette symétrie est naturellement présente dans la couche de fer épitaxiée, qui présente des axes de facile aimantation selon les directions  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$  du substrat. Cette anisotropie du champ coercitif se maintient après recuit sous champ dans la direction  $[100]$ . En revanche, un recuit dans la direction  $[110]$  conduit à un champ coercitif moins élevé dans la direction perpendiculaire au champ appliqué lors du recuit, introduisant ainsi une anisotropie d'ordre 2 dans l'évolution angulaire du champ coercitif. Dans les deux cas de recuit sous champ, le champ coercitif est plus faible que pour l'échantillon non recuit, ce qui est inhabituel.

Le maximum du champ de décalage n'est pas dans la direction du champ appliqué lors du recuit sous champ. Dans le cas d'un recuit en présence d'un champ appliqué dans la direction  $[100]$ , le maximum du champ de décalage est situé de part et d'autre de la direction du champ appliqué lors du recuit. Dans le cas d'un recuit en présence d'un champ appliqué dans la direction  $[110]$ , le maximum du champ de décalage est situé sur des lobes éloignés de la

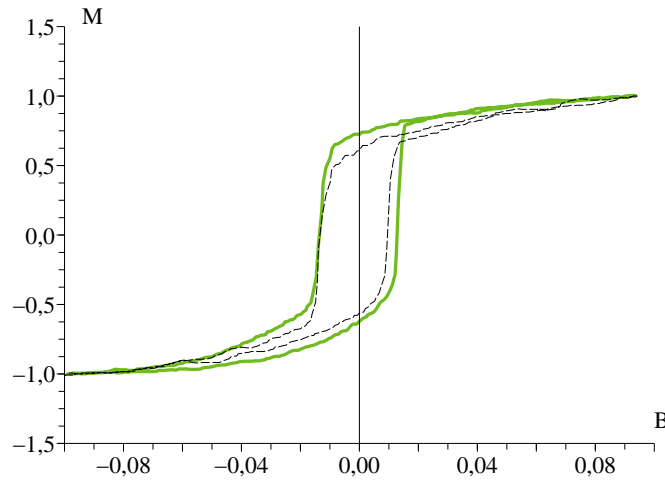


FIG. 2.31 – Cycle d'hystérésis expérimental d'une couche Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) pour un angle de mesure de  $\pi/2$  (trait tireté, noir) et pour  $\pi/2 + \pi/36$  (trait épais, vert), dont les deux branches ne sont pas asymétriques. L'abscisse donne le champ appliqué (T). L'ordonnée donne une image de l'aimantation, mesurée par effet magnéto-optique Kerr, en unité arbitraire.

direction du champ appliqué lors du recuit (figure 2.34).

Nous attribuons ce résultat à la compétition entre les différentes anisotropies présentes dans le système (figure 2.35), auxquelles s'ajoute celle induite par le champ appliqué lors du recuit. Cette situation et les phénomènes remarquables qui en découlent sont liés à la croissance épitaxiale du système, qui entraîne l'apparition d'anisotropies nettes, liées à une structure cristalline que nous nous sommes appliqués à bien connaître par des études structurales. Pour interpréter la relation entre ces différentes anisotropies et les résultats magnétiques, nous utiliserons un modèle permettant la simulation numérique des cycles d'hystérésis de la couche ferromagnétique.

### 2.2.3 Comparaison avec des bicouches FeNi/MnPt

La compétition entre anisotropies du ferromagnétique, de l'antiferromagnétique et de l'anisotropie induite par le couplage d'échange rend le système Fe/MnPt particulièrement intéressant à étudier, mais en complexifie l'étude. De façon à distinguer sans ambiguïté l'effet de l'anisotropie induite par le couplage d'échange, nous avons également réalisé des bicouches FeNi/MnPt, prenant avantage de l'absence d'anisotropie intrinsèque de l'alliage de permalloy.

L'alliage FeNi a été codéposé à partir de cibles de fer et nickel purs, et l'ensemble de la bicouche a subi la même procédure de traitement et de caractérisation que les échantillons Fe/MnPt. Pour les mesures d'effet Kerr magnéto-optique, un laser vert a été employé, car il donnait un signal plus intense que le laser rouge habituellement utilisé. L'épaisseur de la couche de ferromagnétique est de 10 nm.

Une anisotropie d'ordre 2 est révélée par les cycles d'hystérésis dans la réponse de la couche ferromagnétique à un champ planaire, elle est visible dans la direction  $\pi/2$  sur les

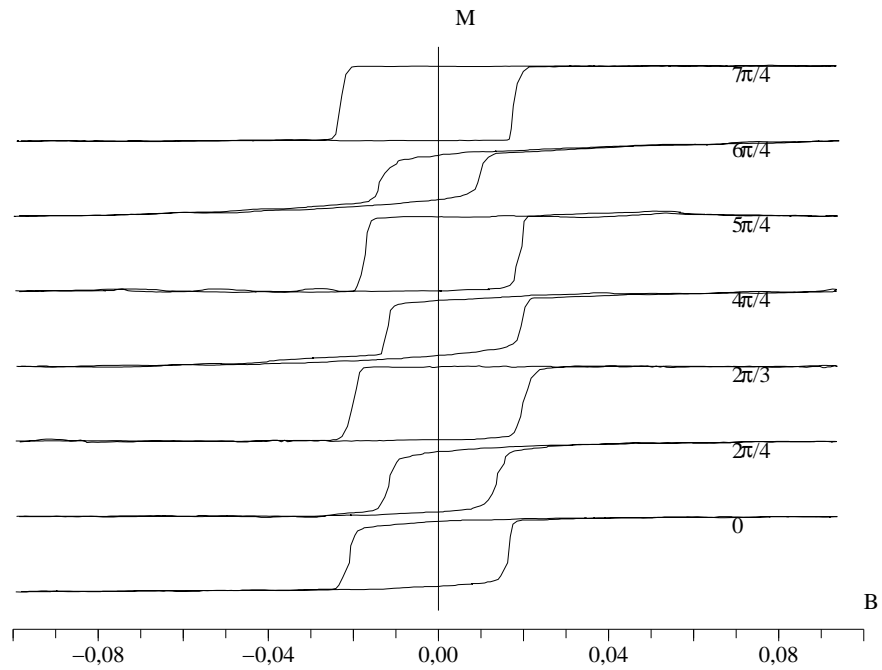
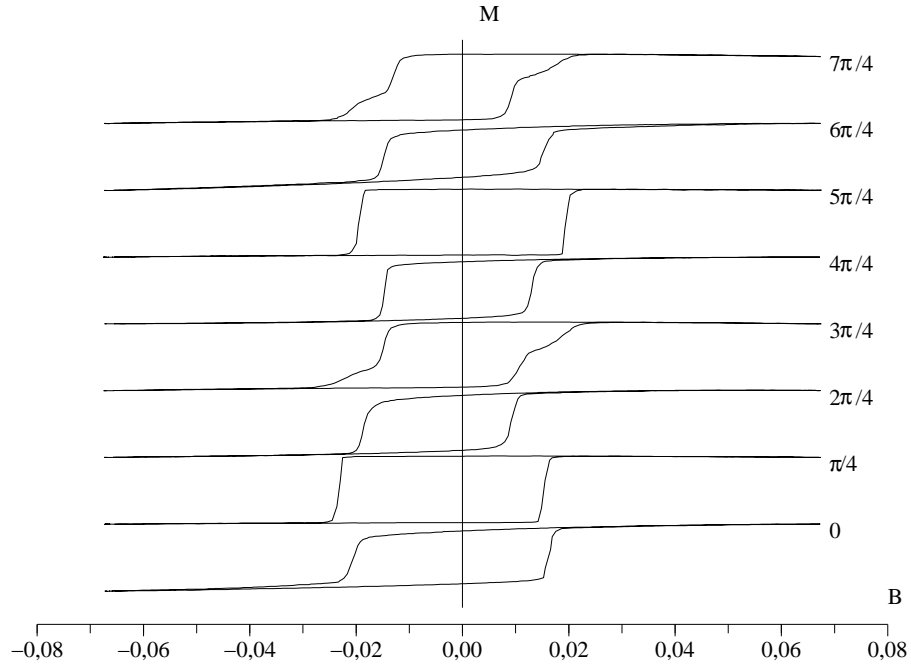


FIG. 2.32 – Cycles obtenus pour des couches Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100), mesurés pour différents angles d'application du champ. En haut, après application d'un champ dans la direction  $[110]$  ( $\pi/4$ ) pendant le recuit. En bas, après application d'un champ dans la direction  $[100]$  (angle 0, voir l'annexe C pour les conventions de notation). L'axe des abscisses est gradué en teslas, l'axe des ordonnées donne une amplitude normalisée.

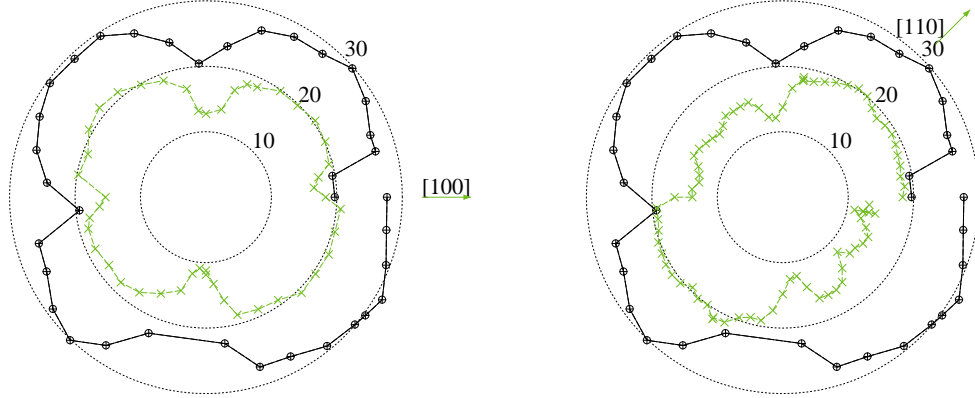


FIG. 2.33 – Champs coercitifs obtenus pour des couches Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). Avant recuit (disques, trait noir, sur les deux graphes) et après recuit [100] (croix, trait vert, à gauche) et [110] (croix, trait vert, à droite), présentés en fonction de l'angle de mesure. La coordonnée radiale représente le champ mesuré en milliteslas, l'angle se lit dans les conventions d'un cercle trigonométrique, une flèche indique la direction du champ lors du recuit.

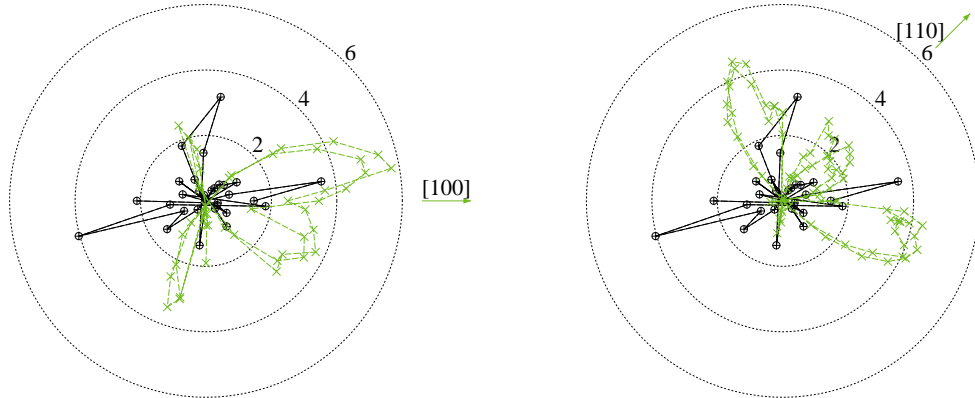


FIG. 2.34 – Champs de décalage obtenus pour des couches Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100), provenant du même jeu de mesures que la figure 2.33. Avant recuit (cercles, trait noir, sur les deux graphes) et après recuit [100] (croix, trait vert, à gauche) et [110] (croix, trait vert, à droite), présentés en fonction de l'angle de mesure. Les conventions du dessin sont identiques à celles de la figure 2.33.

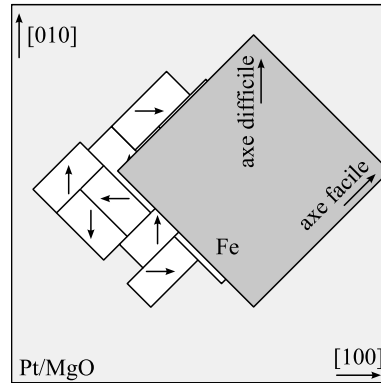


FIG. 2.35 – Différentes anisotropies en jeu dans la bicouche Fe/MnPt : anisotropies dues à l'ordre chimique présent dans les variants, anisotropie due au ferromagnétique.

graphiques (figure 2.39). Cette anisotropie peut avoir plusieurs origines, mais ne semble pas liée au couplage entre les couches ferromagnétique et antiferromagnétique. D'une part, cette anisotropie pourrait être liée à un défaut de coupe du substrat utilisé, l'orientation des défauts ainsi obtenus pouvant être selon une direction de type  $[010]$  du substrat. D'autre part, le mode de croissance est susceptible d'introduire ce type d'anisotropie. En effet, la croissance est réalisée par coévaporation des deux éléments, Fe et Ni, à l'aide d'évaporateurs à bombardement électronique. Les flux atomiques présentent entre eux un angle de 20 degrés environ (figure A.1 en annexe). Le plan normal aux flux et à l'échantillon correspond à un axe  $[100]$  du substrat MgO (001). La direction d'anisotropie observée dans les mesures est donc compatible avec l'orientation des flux et de l'échantillon en position de dépôt, et nous privilégions cette hypothèse.

Outre cette anisotropie d'ordre deux, l'étude angulaire de l'évolution du champ coercitif révèle la présence d'une anisotropie d'ordre quatre, que l'on peut attribuer à l'existence d'un couplage d'échange entre la couche de permalloy et la couche antiferromagnétique de MnPt. Cette anisotropie pourrait être induite par des facteurs structuraux. Cependant, rien dans le dispositif expérimental n'explique aisément une symétrie d'ordre quatre. Par ailleurs, l'étude des propriétés magnétiques d'un échantillon FeNi/Pt/MgO ne révèle pas la présence d'aussi fortes anisotropies (figure 2.36). Enfin, le champ coercitif de la couche de FeNi/MnPt est bien plus élevé que le champ coercitif de l'échantillon FeNi/Pt. Nous attribuons ces effets d'anisotropie et d'augmentation du champ coercitif à l'existence d'un couplage d'échange entre la couche de permalloy et la couche antiferromagnétique.

Une étude plus complète réalisée sur un autre échantillon confirme les fortes valeurs de champ coercitif pour les couches FeNi/MnPt, qui vaut entre 10 mT et 15 mT pour l'échantillon non recuit. Des anisotropies d'ordre 2 et 4 peuvent également être observées. Le recuit sous champ augmente le champ coercitif des échantillons et le porte à des valeurs comprises entre 15 mT et 25 mT. Notons que le sens de cette évolution est opposé à celui observé pour le système Fe/MnPt précédemment décrit.

De la même façon que pour les échantillons comportant du fer, les cycles d'hystérésis obtenus pour les bicouches FeNi/MnPt présentent une forte modification de leur forme (figure 2.38), par comparaison avec les échantillons comportant une couche de permalloy déposée sur substrat platine, qui ne présentent pas d'anisotropie planaire (figure 2.36). Les échantillons de permalloy déposés sur MnPt présentent ce même type de cycle uniquement lorsque la mesure

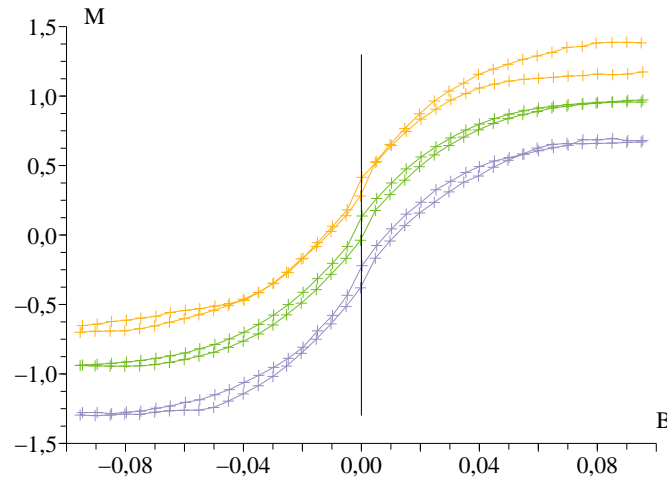


FIG. 2.36 – Cycles d’hystérésis obtenus sur un échantillon de Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). En abscisse, le champ magnétique appliqué en teslas, l’ordonnée est arbitraire. Les trois cycles correspondent, de haut en bas, aux directions  $\pi/12$ ,  $\pi/3$ ,  $-\pi/6$ .

est réalisée avec un angle de  $\pi/2$  par rapport à la direction du champ appliqué lors du recuit. En revanche, dans les autres directions, où le couplage d’échange conduit à un décalage du cycle, les cycles d’hystérésis présentent un renversement beaucoup plus brutal, alors que la rémanence est quasi nulle pour la couche FeNi/Pt (100). En conséquence, le champ coercitif est bien plus élevé. Les recuits de deux échantillons de composition identique, en présence d’un champ selon les directions [100] et [110] conduisent à des formes de cycles d’hystérésis comparables (figure 2.38). L’échantillon non recuit présente également des directions privilégiées en ce qui concerne le champ coercitif (figure 2.37). Ces directions sont les mêmes que pour l’échantillon recuit dans la direction [100], mais l’effet mesuré est de moindre importance.

Ces résultats montrent que le recuit sous champ :

- permet de modifier la réponse magnétique de la couche ferromagnétique, en particulier avec l’apparition d’un décalage d’échange des cycles d’hystérésis dans le cas où le recuit sous champ est effectué suivant un axe [100] et un très net accroissement de la rémanence ;
- permet l’apparition d’une anisotropie induite par l’antiferromagnétique dans la couche de fer ou de permalloy (dans le cas du fer, elle se superpose à l’anisotropie intrinsèque du matériau – dans le cas du permalloy, son origine apparaît sans ambiguïté) ;
- qu’une anisotropie est induite pour les deux directions de champ appliqué lors du recuit et que leurs effets sont du même ordre de grandeur.

Il est dès lors surprenant qu’aucun décalage de cycle ne soit mesuré pour la direction de recuit [110] (figure 2.41). Pourtant, les autres effets associés au recuit sous champ sont bien observés, en particulier la nette modification (accroissement) des champs coercitifs ou la modification de la forme des cycles d’hystérésis. En particulier, l’induction dans la couche ferromagnétique de deux anisotropies d’ordre 2 suite au recuit est une preuve éclatante de l’interaction d’échange entre la couche de MnPt et la couche de FeNi. Notons que l’observa-



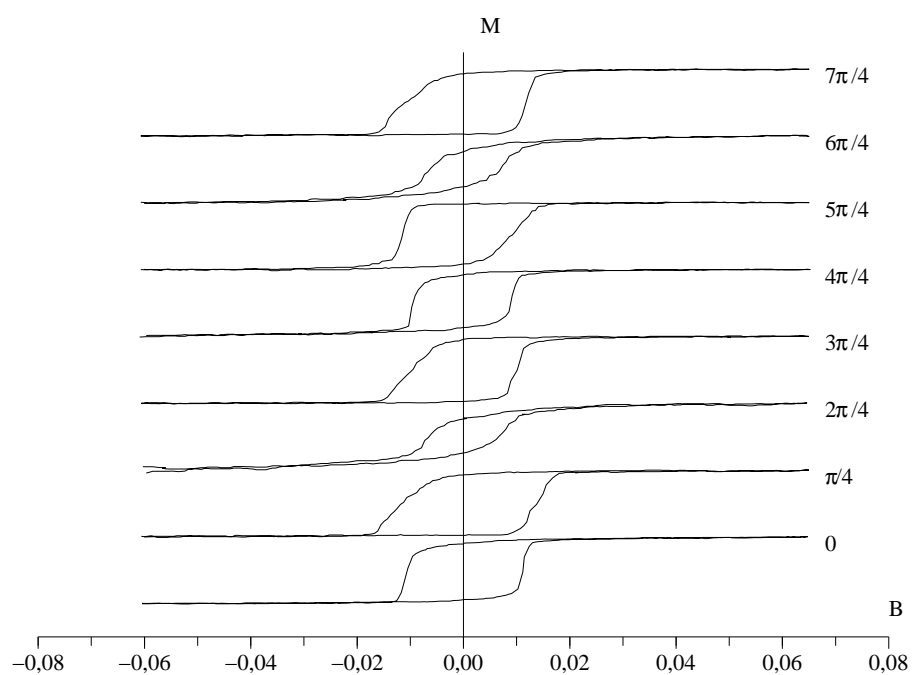


FIG. 2.37 – Cycles obtenus pour des couches Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) avant recuit sous champ, mesurés pour différents angles d'application du champ. L'axe des abscisses est gradué en teslas, l'axe des ordonnées est arbitraire.

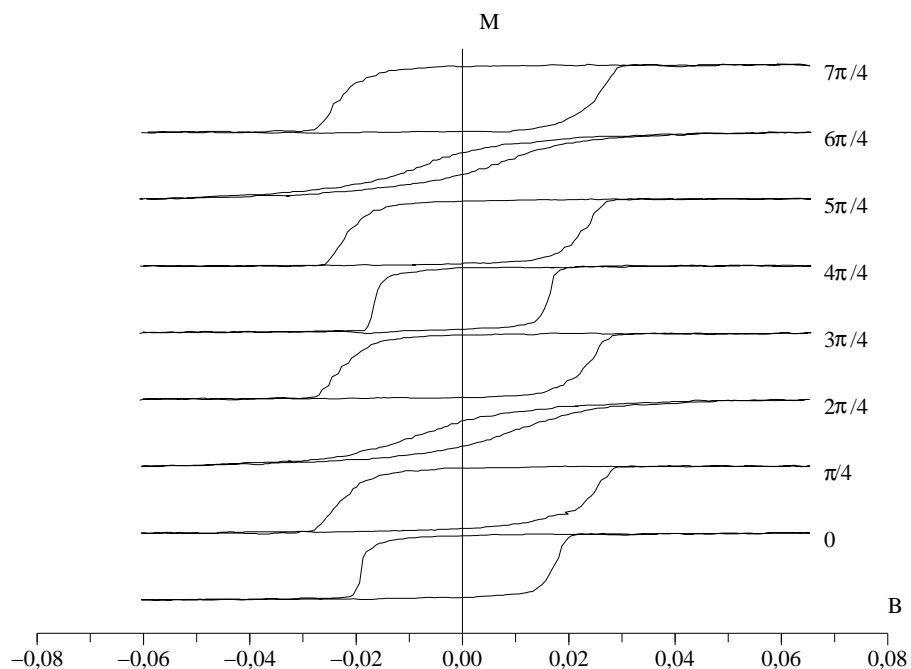
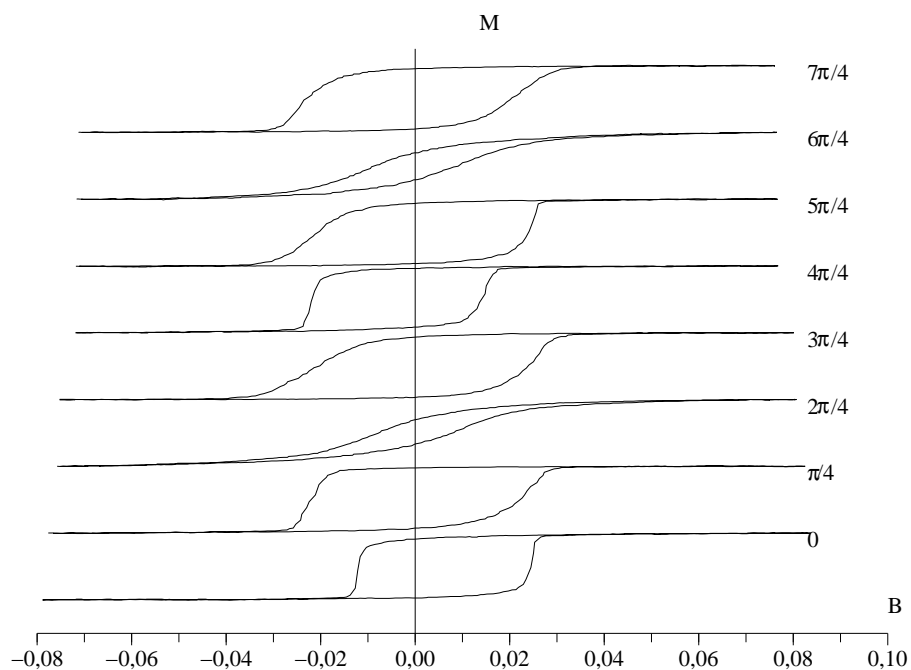


FIG. 2.38 – Cycles obtenus pour des bicouches Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) FeNi/MnPt, après application d'un champ dans la direction [100] (en haut) ou [110] (en bas) pendant le recuit, mesurés pour différents angles d'application du champ. L'axe des abscisses est gradué en teslas, l'axe des ordonnées est arbitraire.

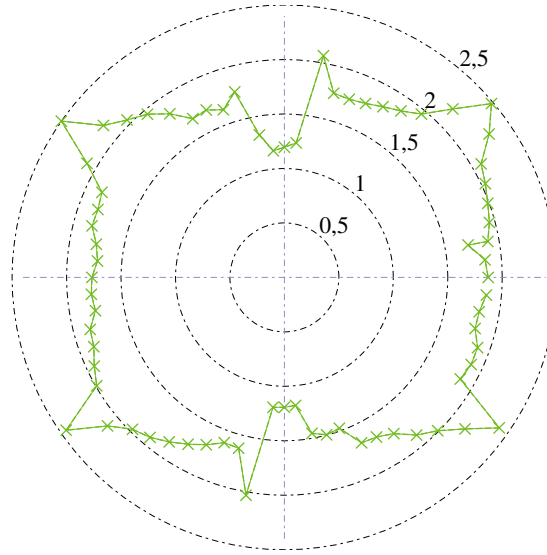


FIG. 2.39 – Évolution du champ coercitif avec l'angle de mesure, dans le cas d'un échantillon de Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) non recuit. La coordonnée radiale donne le champ en milliteslas. Deux lignes précisent les axes d'anisotropie. Sur cet échantillon l'anisotropie induite paraît plus faible que sur ceux étudiés ultérieurement, sur la figure 2.40, mais présente une symétrie de même nature. En abscisse, le champ magnétique appliqué en teslas, l'ordonnée est arbitraire. Les trois cycles correspondent, de haut en bas, aux directions  $\pi/12$ ,  $\pi/3$ ,  $-\pi/6$ .

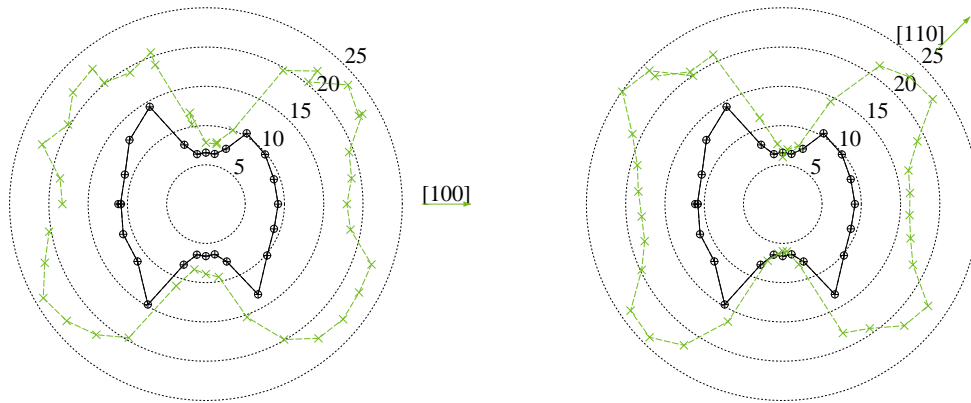


FIG. 2.40 – Champs coercitifs obtenus pour des couches Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). Avant recuit (disques, trait noir, sur les deux graphes) et après recuit [100] (croix, trait vert, à gauche) et [110] (croix, trait vert, à droite), présentés en fonction de l'angle de mesure. La coordonnée radiale représente le champ mesuré en milliteslas, une flèche indique la direction du champ lors du recuit.

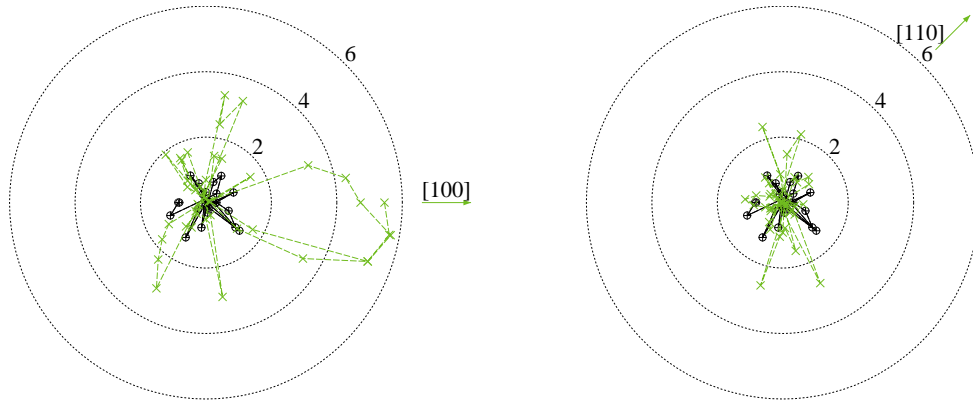


FIG. 2.41 – Champs d'échange obtenus pour des couches Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100), provenant du même jeu de mesures que la figure 2.40. Avant recuit (disques, trait noir, sur les deux graphes) et après recuit [100] (croix, trait vert, à gauche) et [110] (croix, trait vert, à droite), présentés en fonction de l'angle de mesure. La coordonnée radiale représente le champ mesuré en milliteslas et une flèche indique la direction du champ appliqué lors du recuit. La position angulaire du maximum d'échange (graphe de gauche) n'est pas parallèle à la flèche indiquant la direction de recuit sous champ probablement à cause d'un alignement imparfait de l'échantillon soit lors du recuit sous champ, soit lors de la mesure. Noter l'absence d'un champ de décalage notable dans le cas du recuit [110].

tion des cycles provenant de l'échantillon non recuit montre qu'une anisotropie préexiste dans l'échantillon avant tout recuit sous champ. Dans le cas du recuit en présence d'un champ appliqué dans la direction [100], l'anisotropie induite est de même nature et de même orientation que l'anisotropie initiale de l'échantillon, et un décalage de cycle apparaît. Pour comprendre mieux pourquoi la direction [110] est moins favorable pour l'apparition d'un champ de décalage, considérons que l'absence de décalage d'échange pour le recuit [110] montre que :

- l'orientation du moment de surface n'est pas figée, elle peut tourner lors de la réalisation d'une mesure d'hystérésis ;
- il n'y a pas de moments piégés dans le volume de l'échantillon.

Nous proposerons une interprétation à ces observations après la présentation de résultats de simulation numérique, au paragraphe 2.3.7.

#### 2.2.4 Modes de renversements d'aimantation

Dans ce paragraphe, nous étudierons le mode de renversement de l'aimantation dans le cas de bicouches couplées Fe/MnPt et FeNi/MnPt. L'objectif est de notamment déterminer, en fonction de l'orientation du couplage sous champ, si le renversement de l'aimantation se produit par rotation cohérente ou par propagation de parois. Pour cela, nous étudierons les échantillons par microscopie à force magnétique sous champ.

De façon à comprendre les observations de microscopie à force magnétique, nous devons d'abord nous interroger sur le type de parois que nous sommes susceptibles de rencontrer dans l'échantillon. Les couches de fer étudiées dans ce travail sont épitaxiées et ont une épaisseur de 10 nm. À ces épaisseurs, l'effet dû aux marches et à la rugosité du substrat, très faible,

sera négligé (réf. [141] pour une couche d'épaisseur comparable, de 15 nm). L'existence de marches même hautes à la surface du substrat peut ne pas perturber le pavage en domaines magnétiques ([142], cas de marches de 100 nm), mais leur présence peut changer profondément les propriétés magnétiques en induisant une anisotropie ([143, 144]). Dans notre cas, le choix d'une épaisseur de 10 nm donnera selon toute vraisemblance des parois de Néel. Par exemple, dans le cas de Fe/MgO, la transition entre les parois de Bloch et parois de Néel est située à une épaisseur comprise entre 100 nm et 12 nm [145]. Nos couches étant toujours plus fines, nous nous attendons à observer des parois de Néel.

Il est ainsi vraisemblable que nos échantillons comporteront des domaines séparés par des parois de Néel. La configuration de domaines dans des échantillons présentant un couplage d'échange a été étudiée dans la littérature. Dans une publication, un champ de décalage est créé au sein d'une bicouche Fe/MnPd, dans la direction de facile aimantation du fer. L'échantillon est alors saturé dans la direction de difficile aimantation puis observé à champ nul. Des domaines ont été observés présentant des parois orientées selon la direction de facile aimantation du fer [68]. L'interprétation proposée par les auteurs est que cette direction est plus favorable du point de vue de l'énergie magnétostatique. Cette interprétation nous semble peu assurée. Une autre interprétation pourrait être que cette orientation soit due à l'interaction d'échange entre les deux couches. Autre exemple, une étude menée en réflectivité de neutrons polarisés dans des structures FeF<sub>2</sub> monovariées et bivariées, couplées à une couche de fer a permis de relier la structure au mode de retournement [146]. Les auteurs concluent à l'existence de mécanismes de renversement par rotation ou par propagation de paroi en fonction de l'orientation de l'échantillon dans le champ et en fonction de la présence ou de l'absence de variants planaires. Nous reviendrons sur les conclusions de cette étude.

Dans le cas de nos échantillons, le type de renversement de l'aimantation a été étudié par microscopie à force magnétique ou MFM. Dans la littérature, des observations sur des systèmes proches de celui étudié ici ont été effectuées notamment par réflectivité de neutrons polarisés et la photoémission d'électrons. La microscopie MFM permet, à l'inverse de ces techniques, une observation des domaines magnétiques tout en maîtrisant les conditions du champ appliqué. Le microscope<sup>3</sup> a été modifié pour ne pas contenir de matériaux présentant des propriétés ferromagnétiques (à l'exception bien évidemment de la pointe aimantée). Il est placé dans le champ, coplanaire à l'échantillon, créé par un électroaimant et dont la valeur est mesurée à l'aide d'une sonde de Hall (figure 2.42).

Des échantillons Fe/MnPt/Pt sont préparés. Ils sont recuits avec application d'un champ dans la direction [110] (dans les conditions expliquées à l'annexe A.4). Ils sont ensuite étudiés à l'aide du microscope à force magnétique et baignés dans un champs compris entre -30 mT et 30 mT. Les images de la figure 2.43 correspondent à un champ d'environ 14 mT, positif ou négatif, ce qui permet de se placer près du champ coercitif. Le placement précis du point sur le cycle d'hystérésis n'est cependant pas possible : les cycles d'hystérésis mesurés par effet magnéto-optique et les études réalisées par MFM placent les échantillons dans des conditions très différentes du point de vue de la cinétique de l'évolution des champs. Les images correspondant à la saturation ont été prises pour un champ de 30 mT. Ce champ est suffisant pour que le renversement de l'aimantation soit complet (figure 2.44). Par ailleurs ce champ ne pourrait être choisi plus élevé, il risquerait alors de vaincre l'anisotropie de forme de la pointe du MFM et de donner une composante planaire à son aimantation. Cela n'entraînerait pas de dommage irréversible à la pointe, mais l'interprétation des images serait délicate [147].

---

<sup>3</sup>Digital Instruments Multimode

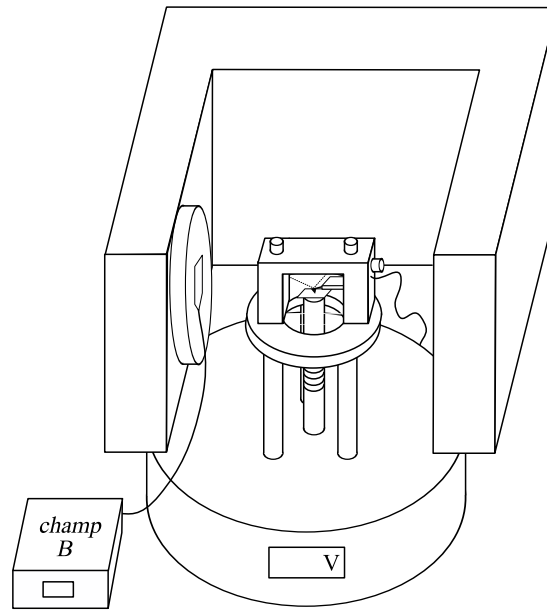


FIG. 2.42 – Illustration de la mise sous champ du microscope à force magnétique.

On étudie en premier lieu la configuration dans laquelle la direction du champ appliqué est perpendiculaire à la direction du champ appliqué pour le cycle d'hystérésis. La réalisation d'images à différentes valeurs de champ montre que le renversement de l'aimantation se fait par nucléation et propagation de parois. L'orientation de ces parois est le résultat de la compétition entre l'anisotropie du fer, le champ de décalage et le champ appliqué. On remarque par ailleurs que les directions des parois en champ croissant et décroissant sont symétriques par rapport à la direction du champ appliqué lors du recuit. Cet effet résulte bien évidemment de la symétrie du système : symétrie de la direction et du sens du champ appliqué lors du recuit et des directions de facile aimantation du fer par rapport à la direction du champ appliqué pour la mesure. Cela montre également que les parois magnétiques ne sont pas contraintes, par exemple en raison de défauts, à adopter une direction particulière. Au plus forts champs, le contraste des domaines disparaît et seules des fluctuations, étudiées plus loin (paragraphe 2.2.5), persistent.

L'application du champ dans la direction parallèle au champ de décalage n'a pas permis de mettre en évidence la présence de parois de domaines, et donc d'un mécanisme de renversement de l'aimantation par propagation de parois. Un renforcement du contraste du signal magnétique est observé pour des champs appliqués dont la valeur est proche du renversement de l'aimantation (ce qui a déjà été remarqué par certains auteurs pour d'autres techniques magnétiques [148]). Le contraste magnétique n'est cependant pas isotrope et les zones correspondantes montrent une forme allongée dont la direction de grande longueur semble qualitativement tourner lorsque le champ varie, pour finalement s'aligner avec le champ pour ses plus fortes valeurs. Cette tendance est cependant difficile à quantifier.

Dans le cas du champ appliqué dans la direction parallèle au champ de décalage, nos observations ne montrent pas la présence de parois de domaines. Il n'est cependant pas certain que le renversement se produise par rotation, et ce pour plusieurs raisons.

- En premier lieu, la microscopie MFM est une observation locale, la taille de la zone

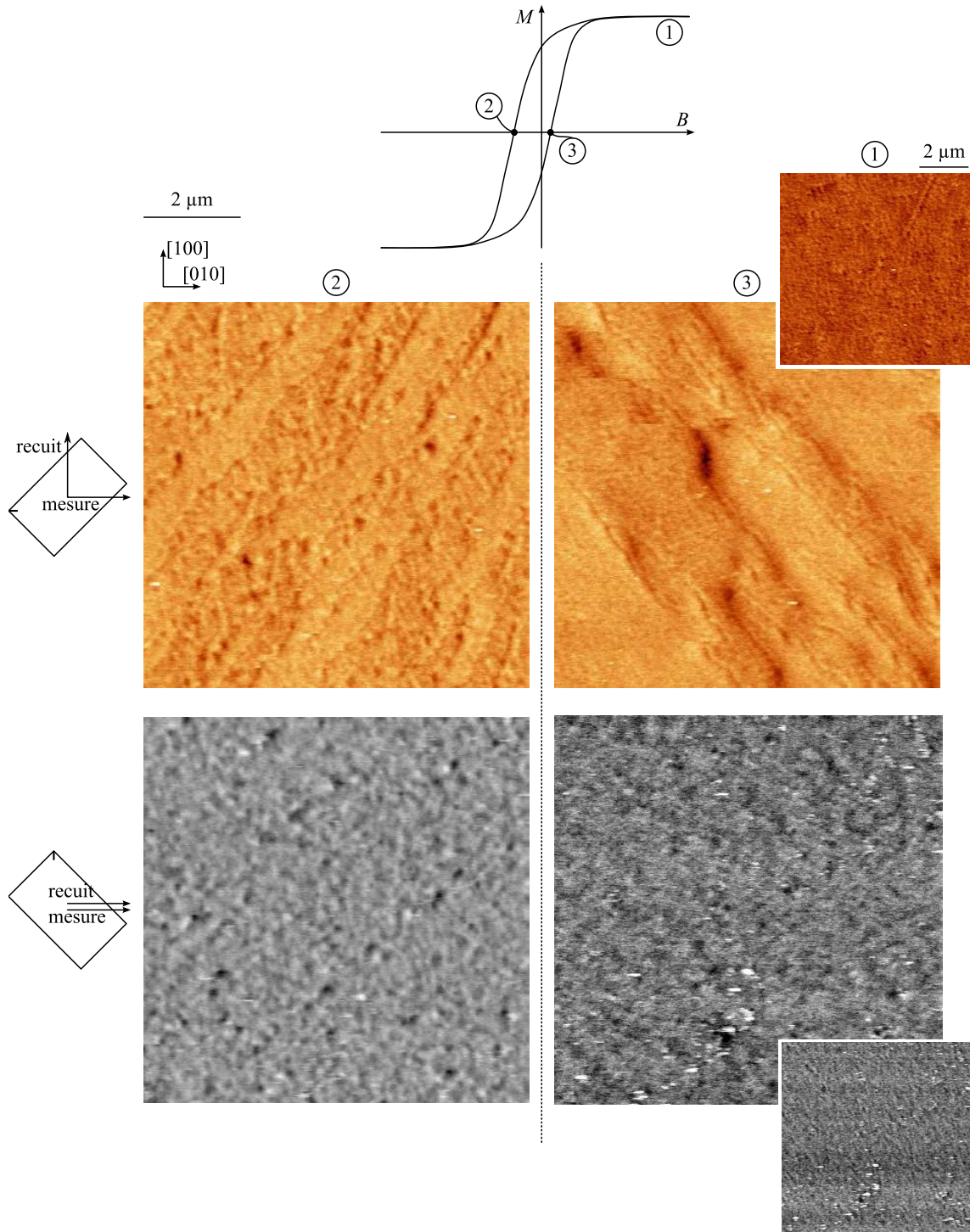


FIG. 2.43 – Observation d'échantillons de Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) par MFM sous champ, pour des valeurs de champ proche des champs coercitifs. Seule la direction d'application du champ perpendiculaire à la direction champ lors du recuit donne un contraste traduisant la présence de domaines magnétiques. Les cycles correspondant à ces observations sont donnés sur la figure 2.44.



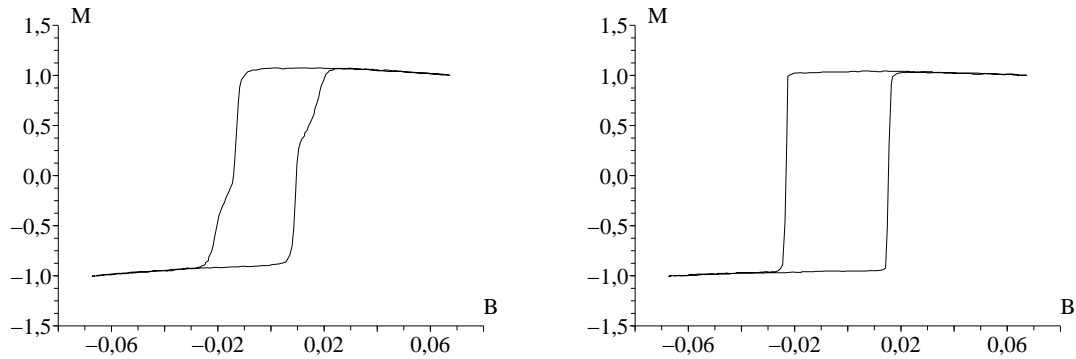


FIG. 2.44 – Cycles d’hystérésis mesurés par effet magnéto-optique Kerr effectués sur l’échantillon caractérisé sur la figure 2.43. À gauche, le cycle correspond à un champ appliqué perpendiculairement à la direction du champ appliqué lors du recuit, donnant un retournement en deux étapes et un cycle symétrique. À droite, le cycle correspond à un champ appliqué parallèlement à la direction du champ appliqué lors du recuit. Le champ est en teslas, l’aimantation en unité arbitraire.

observée est ici de l’ordre de  $10\ \mu\text{m}$  de côté. Il est possible que la taille caractéristique des domaines soit plus grande que  $10\ \mu\text{m}$  et que, pour de simples raisons statistiques, aucune paroi de domaine n’ait été observée.

- D’autre part, l’observation de parois de domaines est plus probable lorsque le champ est proche du champ coercitif. Le nombre de points de mesure étant par nécessité relativement faible, il est possible qu’aucun des points de mesure ne soit suffisamment proche du point de renversement pour que des domaines soient observés.
- La mesure d’une image demande un temps de l’ordre de 20 min pour une vitesse de balayage d’une ligne par seconde. Ce temps correspond à un seul point  $(B, M)$  du cycle d’hystérésis. Ce temps est considérablement plus long que la durée habituelle de mesure d’un point de champ par les techniques de mesure de cycle d’hystérésis utilisées par ailleurs dans ce travail (magnétométrie à échantillon vibrant, effet Kerr magnéto-optique). Lors de ce temps que passe l’échantillon sous le champ appliqué, son état magnétique peut évoluer et l’observation peut ne pas donner l’état mis en jeu lors de cycles d’hystérésis mesurés beaucoup plus rapidement.
- Enfin, pendant le temps de mesure, outre le champ appliqué, la pointe, elle-même aimantée, perturbe localement l’échantillon. Cette perturbation peut conduire à « effacer » les parois magnétiques (figure 2.45) ou, de façon plus pernicieuse, à les déplacer.

Pour compléter les mesures ci-dessus, un échantillon de FeNi/MnPt/Pt est préparé. L’utilisation du permalloy permet de s’assurer sur l’anisotropie du ferromagnétique n’empêche pas de mesurer correctement le mode de renversement. L’échantillon est recuit sous champ avec application d’un champ dans la direction  $[110]$ , est placé entre des bobines créant un champ dans de direction  $[1\bar{1}0]$ , c’est-à-dire un champ compris dans le plan de l’échantillon mais perpendiculaire à la direction du champ appliqué lors du recuit (figure 2.46). Le principe de la mesure est d’étudier l’évolution temporelle de l’aimantation après application d’une marche de champ qui part de la saturation à une valeur proche du champ coercitif. L’expérience est renouvelée pour plusieurs valeurs du champ de recul, ce qui permet d’étudier la réponse



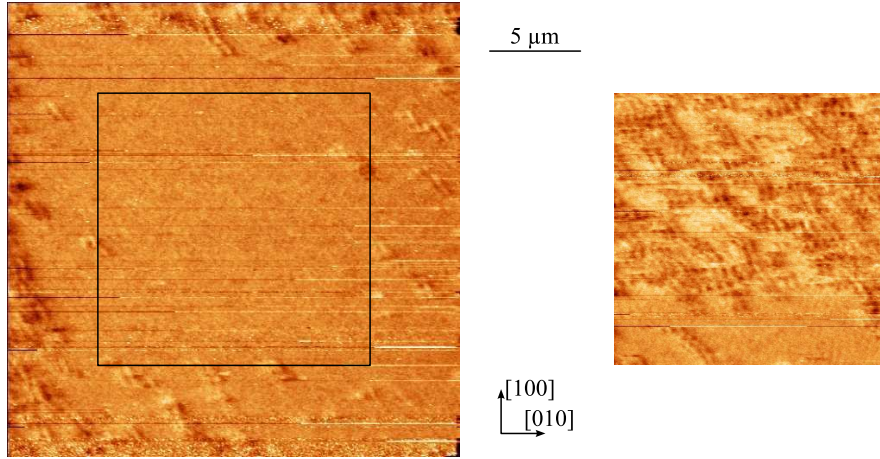


FIG. 2.45 – Illustration de l'effet de la pointe sur les domaines magnétiques. La mesure est effectuée sur un échantillon Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). La zone centrale (à droite) a été imagée en premier et un contraste magnétique traduisant la présence de parois de domaines a été observé. L'observation d'une zone plus étendue (à gauche) révèle que la même zone centrale (soulignée sur l'image) ne présente plus de variation de contraste, tandis que les bords de l'image, qui n'avaient pas été précédemment imagés, montrent un contraste. Cela traduit l'effet d'une pointe fortement aimantée sur l'échantillon Fe/MnPt (ici déposé couche par couche, tel qu'expliqué au chapitre suivant), qui « efface » les domaines magnétiques à mesure qu'elle les image.

de l'échantillon le long du renversement de l'aimantation. Les mesures réalisées (figure 2.47) montrent que l'aimantation évolue rapidement et se stabilise à une valeur qui dépend du champ appliqué. Or la mesure est effectuée dans une direction où le renversement de l'aimantation est assez abrupt. Tout un intervalle d'aimantations entre les deux extrêmes est instable, et l'aimantation ne peut se stabiliser suivant les orientations intermédiaires entre les directions parallèles et antiparallèles au champ. Les mesures montrent cependant que l'aimantation peut se stabiliser plusieurs valeurs intermédiaires d'aimantation. Cela est compatible avec un mode de renversement par propagation de parois de domaines. Les parois restent en effet piégées sur des défauts et chaque défaut requiert un champ différent pour être franchi. L'expérience a été réalisée pour les deux sens de variation du champ et montre un comportement identique.

L'ensemble de ces résultats est compatible avec ceux publiés dans la littérature pour le système Fe (polycristallin)/FeF<sub>2</sub> (bivarié) (tableau 2.5), mais il convient de faire remarquer que dans notre cas, les mécanismes de renversement observés sont les mêmes sur les deux branches du cycle d'hystérésis, alors que dans la littérature certains auteurs rapportent deux mécanismes différents. Il en est ainsi, pour le système Fe (polycristallin)/FeF<sub>2</sub> [146]. D'autres auteurs ont noté l'existence de mécanismes différents sur les deux branches du cycle d'hystérésis dans le cas du système Fe (polycristallin)/MnF<sub>2</sub> (bivarié) [59]. Une direction de facile aimantation apparaît au sein du ferromagnétique polycristallin, dans la direction médiane entre les deux directions d'anisotropie des variants. Il s'agit là d'une forme d'anisotropie induite. Les auteurs proposent deux mécanismes différents pour les deux branches du cycle d'hystérésis. En champ croissant, l'anisotropie d'échange favorise un alignement du ferromagnétique avec le champ de décalage créé lors du recuit sous champ. Dans ce cas, le couplage favorise la formation de domaines inverses lors du renversement de l'aimantation plutôt que

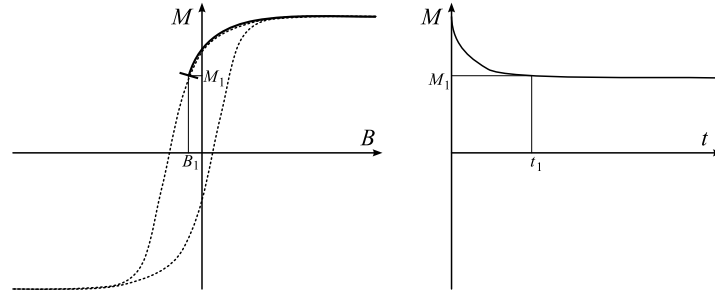


FIG. 2.46 – Principe de la mesure de relaxation. L'échantillon est d'abord saturé, puis le champ est rapidement porté à une valeur proche du champ coercitif. L'évolution temporelle de l'aimantation est enregistrée. L'expérience est renouvelée pour plusieurs valeurs de champ de recul.

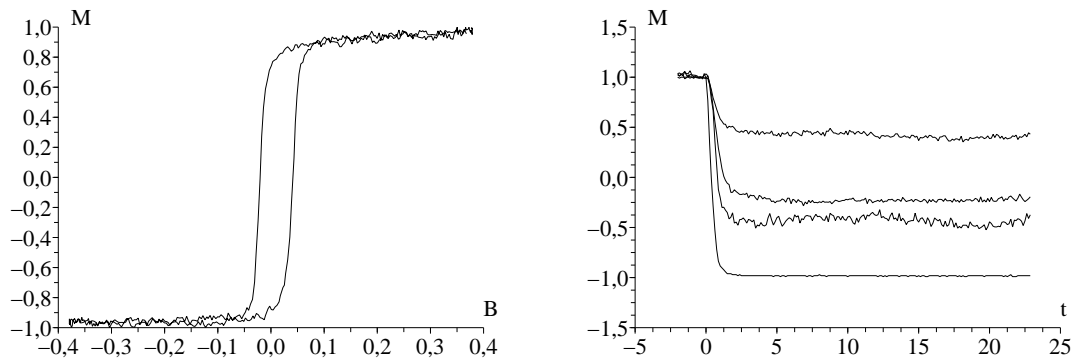
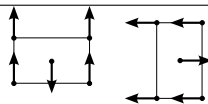
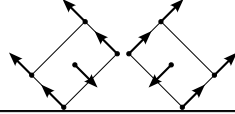


FIG. 2.47 – Cycle d'hystérésis (à gauche) présentant un décalage d'échange de  $-10$  mT et montrant en abscisses le champ (T) et une image de l'aimantation (unité arbitraire). Mesure de relaxation correspondante (à droite) effectuée dans les mêmes conditions que le cycle précédent, montrant en abscisses le temps (unité arbitraire) et en ordonnées une image de l'aimantation (unité arbitraire). L'échantillon étudié a pour composition Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) et le champ appliqué fait un angle de  $3\pi/4$  par rapport à la direction du champ appliqué lors du recuit.

configuration	résultat littérature	présent résultat
	rotation	rotation
	rotation (gauche) propagation de parois (droite)	propagation de parois propagation de parois

TAB. 2.5 – Comparaison des mécanismes de renversement obtenus dans la littérature [146] et dans le présent travail. Le dessin des variants correspond à un plan d’interface  $\text{FeF}_2$  compensé de la publication citée et se transpose aisément dans la structure non-compensée de  $\text{MnPt}$ . Le recuit est effectué dans la direction verticale (sur ce schéma :  $\uparrow$ ).

la rotation cohérente. Une étude en réflectivité de neutrons sur des échantillons comparables [139] confirme l’existence de ce mécanisme. Dans la direction perpendiculaire au champ de décalage, il n’y a cependant aucune raison de privilégier l’un ou l’autre des mécanismes [68].

Notre étude se distingue par le caractère monocristallin et anisotrope de la couche ferromagnétique (à l’exception du cas de la couche de permalloy étudiée à dessein). L’anisotropie du fer joue très certainement un rôle dans l’origine du mécanisme de renversement de l’aimantation.

### 2.2.5 Fluctuations

Les bicouches couplées étudiées dans le présent travail ont également fait l’objet de mesures de microscopie à force magnétique ayant pour but de mettre en évidence le mode de renversement de l’aimantation. Mais ces mesures ont également révélé la présence d’ondulations du contraste magnétique à une échelle de l’ordre de quelques centaines de nanomètres. De telles ondulations<sup>4</sup> ont déjà été décrites dans la littérature, et ont été observées aussi bien sur des couches minces que pour des alliages massifs [149]. Dans le cas de couches polycristallines, la dispersion en taille des grains conduit en effet à d’importantes variations locales des propriétés magnétiques [150]. Des variations locales d’axe de facile aimantation du ferromagnétique peuvent ainsi conduire à la présence de ces ondulations observables par MFM. Il en est ainsi d’ondulations de taille caractéristique  $1\ \mu\text{m}$  dans des couches de  $\text{NiFe}$  électrodéposées [151]. De telles ondulations ont également été observées dans le cas de couches polycristallines ferrimagnétiques [152]. Dans ce cas, les fluctuations étaient interprétées par une variation locale d’anisotropie que les auteurs attribuaient à la structure du ferrimagnétique. Pour expliquer les résultats, il fallait supposer une dispersion de la direction d’anisotropie de l’ordre de  $30^\circ$ . Pour éviter les désagréments causés pour les applications par cette dispersion de propriétés magnétiques, les auteurs suggéraient l’utilisation de dépôts par épitaxie. D’autre part, ils notaient que les échantillons présentant un couplage d’échange avec une couche d’ $\text{IrMn}$  ne montraient plus ces ondulations. L’antiferromagnétique créant un axe de facile aimantation, il défavorise les fluctuations. Un effet identique de suppression du contraste d’ondulation dans le cas de bicouches couplées a également été observé dans le cas de couches  $\text{NiFe/Co}$  et  $\text{NiFe/CoO}$  électrodéposées [153]. D’autres auteurs attribuent la dispersion de propriétés magnétiques à la superposition de termes des anisotropies cristalline et magnétoélastique [154]. Au final, des

<sup>4</sup>Ces ondulations sont appelées *ripples* dans les publications anglophones.

ondulations ont été observées pour des tailles caractéristiques allant de 100 nm à 2  $\mu\text{m}$ . Un autre auteur étudie la présence des ondulations dans des couches de permalloy dans lesquelles une anisotropie uniaxe a été induite par les conditions de dépôt [155]. Cependant, aucune étude spécifique n'a été réalisée sur des bicouches couplées dans la littérature.

Dans le cas de nos échantillons, les ondulations observées ne devraient pas être liées à une dispersion de propriétés du ferromagnétiques. En effet, la couche étudiée ici est monocristalline. La dispersion d'origine structurale, que l'on peut associer à largeur mosaïque mesurée par diffraction des rayons X est au maximum de  $1^\circ$ . La couche ferromagnétique présente ainsi une très faible hétérogénéité intrinsèque. C'est donc dans le couplage avec l'antiferromagnétique qu'il faut chercher l'origine des résultats observés. Il est déjà connu que la présence d'un couplage entre un ferromagnétique et un antiferromagnétique peut créer un axe facile dans une couche ferromagnétique qui en serait dépourvue [152]. Mais dans notre cas, la structure de l'antiferromagnétique est bivariable. Localement, chaque variant antiferromagnétique tend à induire une anisotropie dans le volume de la couche ferromagnétique avec lequel il est couplé. L'existence d'une distribution de variants antiferromagnétiques induit ainsi une frustration magnétique au sein de la couche de ferromagnétique. C'est cette frustration qui est à la source de la dispersion d'angle d'aimantation observée dans la couche ferromagnétique.

Nous disposons ainsi d'un système d'une grande qualité cristalline présentant une source bien caractérisée de dispersion des propriétés magnétiques. Cela fait que nos échantillons sont particulièrement adaptés à l'étude de ces fluctuations, notamment pour sa modélisation.

Remarquons tout d'abord que les fluctuations observées ne sont pas simplement induites par la structure des couches. En effet, une couche de permalloy déposée sur substrat platine ne montre pas de telles fluctuations d'aimantation (figure 2.48), alors que la couche de permalloy déposée sur MnPt en présente (figure 2.49). Nous pouvons considérer que MnPt et Pt présentent une surface de croissance comparable, compte-tenu de la proximité de leurs structures et de leurs paramètres de maille<sup>5</sup>.

De façon à interpréter ces fluctuations de signal magnétique, nous proposons d'étudier l'effet de la dispersion des orientations des variants lors de la croissance sur la couche ferromagnétique. À l'échelle locale, il existe une compétition entre l'échange dans le fer et le couplage d'échange entre le ferromagnétique et l'antiferromagnétique. En effet, l'échange dans le fer tend à créer des grands domaines où l'aimantation est uniforme. En revanche, le caractère bivariable des échantillons fait que le couplage d'échange tend à créer des parois dans le ferromagnétique. Cette compétition doit aboutir à l'existence d'une longueur caractéristique. Pour mettre en évidence cette longueur, nous proposons un modèle d'énergie qui prend en compte :

- L'échange dans le fer caractérisé par une constante  $A$  (tableau 2.6) ;
- L'anisotropie de la couche ferromagnétique, caractérisée par une constante  $k$  et par la présence de deux axes faciles orientés selon les directions  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$  (orientations données par rapport à la maille de platine).
- Le couplage d'échange entre l'antiferromagnétique et le ferromagnétique, caractérisé par un champ effectif  $h_e$ .

Les cristallites antiferromagnétiques sont supposées réparties aléatoirement dans le plan

---

<sup>5</sup>L'utilisation d'une structure MnPt/FeNi/Pt serait également possible pour se placer réellement sur le même substrat, mais aurait un double désavantage : d'une part, d'avoir un signal bien plus faible en raison de la présence du dépôt métallique au-dessus de la couche étudiée ; d'autre part, par le fait que MnPt déposé sur FeNi n'est peut-être pas de même structure que MnPt déposé sur Pt, en raison notamment de l'important désaccord de maille entre les deux matériaux (des valeurs numériques pour ce désaccord de maille sont discutées au paragraphe 2.3.7).

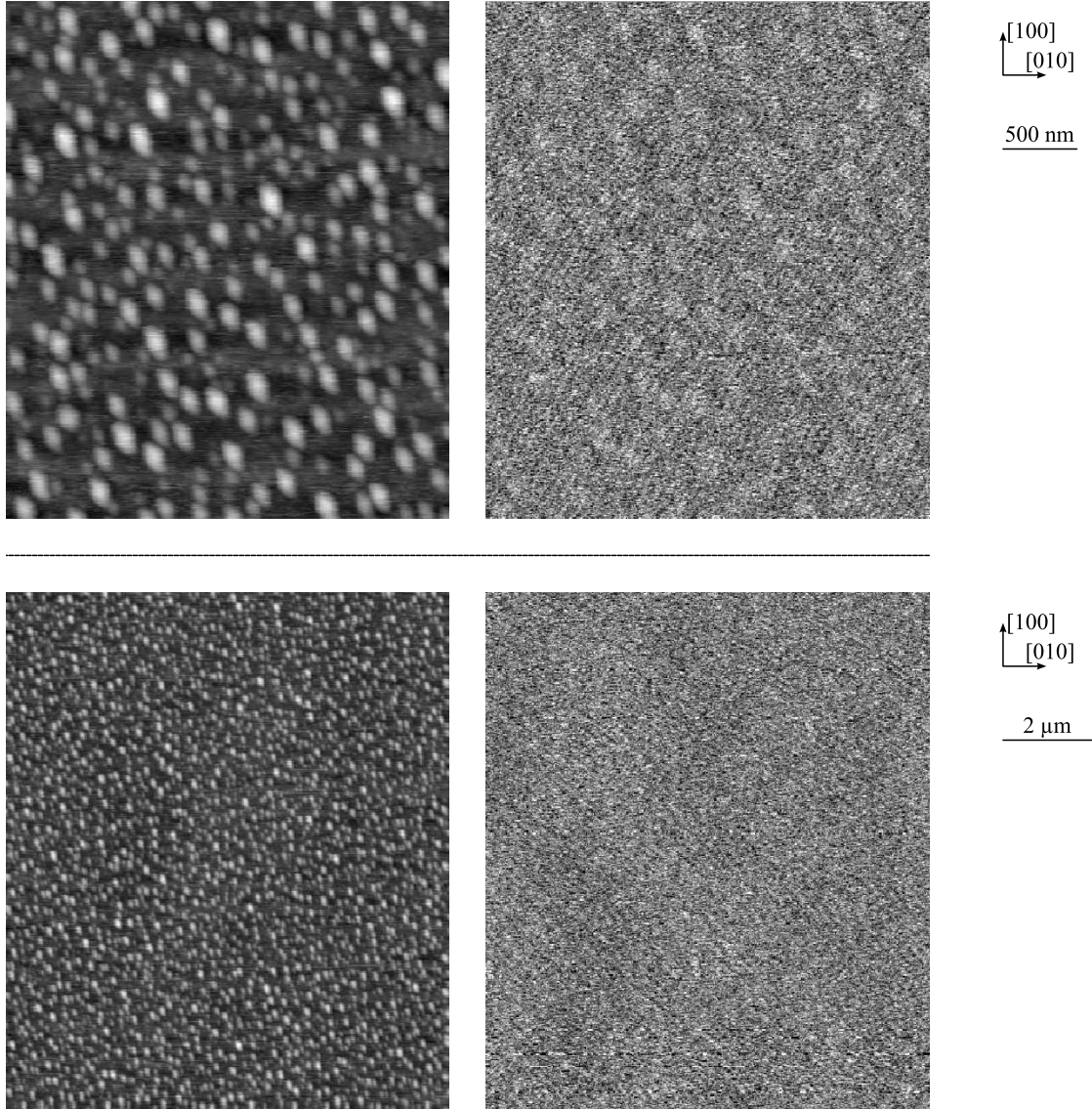


FIG. 2.48 – Images AFM et MFM d'un échantillon de Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). En haut, images de 3 μm ; en bas, images de 10 μm. À gauche, les images topographiques, à droite les images magnétiques correspondantes. L'échantillon a été saturé puis observé en l'absence de champ appliqué. Le contraste de l'image magnétique est informatiquement amplifié pour montrer l'absence de fluctuations d'origine magnétique. Les légères fluctuations visible sur l'image de 3 μm sont liées au contraste topographique. La variation périodique d'intensité visible sur les images magnétiques est d'origine instrumentale, et est visible ici en raison de la forte amplification du contraste.



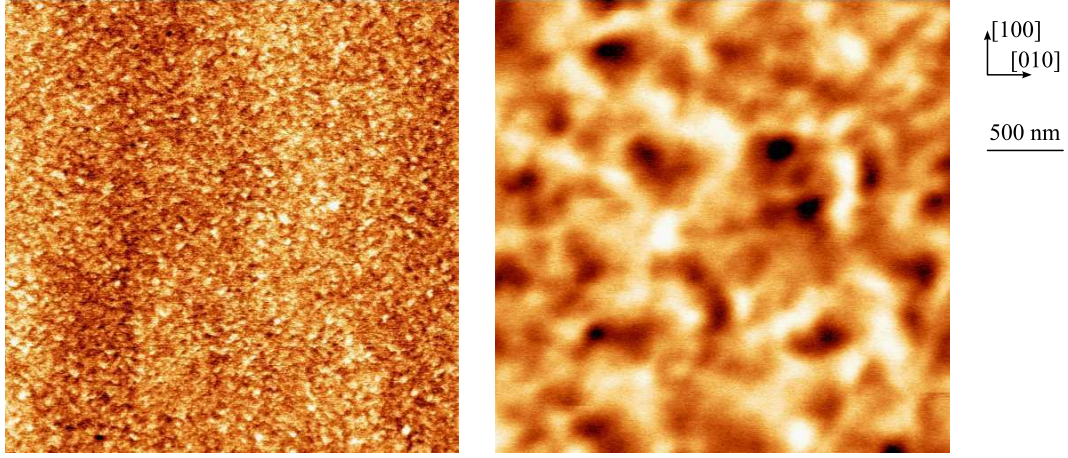


FIG. 2.49 – Image MFM d'un échantillon de Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100), de taille 3  $\mu\text{m}$ . À gauche l'image topographique, à droite l'image magnétique. Il apparaît que les ondulations du contraste magnétique ne sont pas d'origine topographique.

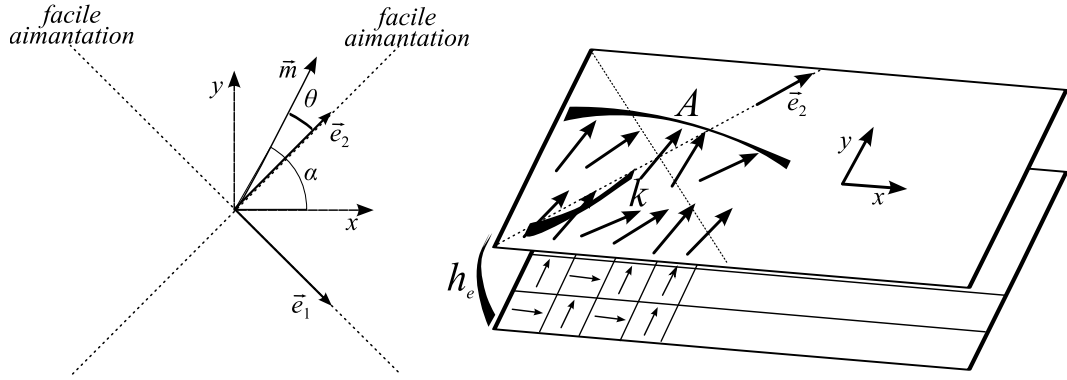


FIG. 2.50 – Définition du système et des angles dans la modélisation des fluctuations observées sur l'image MFM.

(figure 2.50). Par ailleurs, nous supposons dans un premier temps que nous nous trouvons à l'état relaxé : le ferromagnétique a tendance à s'orienter selon sa direction de facile aimantation, à  $\pi/4$ , et ne subira que de petites fluctuations autour de cette valeur. Pour la même raison, le champ effectif d'échange ou le champ appliqué seront également orientés dans la direction de facile aimantation du fer. Nous supposons pour simplifier la modélisation que les directions d'aimantation de surface de l'antiferromagnétique sont rigides. Le modèle proposé suppose également que les aimantations sont coplanaires. Cette hypothèse se justifie par la forte anisotropie des matériaux utilisés et par le fait que la mesure est effectuée dans des conditions éloignées du renversement de l'aimantation.

L'aimantation du fer est définie par  $\vec{M}_F = M_s \vec{m}_F$ , avec  $\vec{m}_F = (\cos \alpha, \sin \alpha) = (\cos(\pi/4 + \theta), \sin(\pi/4 + \theta))$ . Pour l'antiferromagnétique,  $\vec{M}_{AF} = M_s^{AF} \vec{m}_{AF}(x, y)$ . Ici,  $\vec{m}_{AF}(x, y)$  dénote la distribution d'orientation des moments non-compensés de surface de l'antiferromagnétique, due à la structure bivariée. Cette distribution définie en tout point peut prendre deux valeurs

qui sont les vecteurs  $\vec{e}_x$  et  $\vec{e}_y$ , comme conséquence de la sélection d'orientation survenue lors du recuit sous champ (figure 2.50). Du point de vue macroscopique, la direction moyenne de l'interaction d'échange est  $\vec{e}_x + \vec{e}_y$ . La densité d'énergie par unité de volume de la couche ferromagnétique s'écrit alors :

$$E_v = A \left( \text{grad } \vec{m}_F \right)^2 + k(\vec{m}_F \cdot \vec{e}_1)^2 (\vec{m}_F \cdot \vec{e}_2)^2 - \mu_0 h_e M_s \vec{m}_{AF}(x, y) \vec{m}_F \quad (2.2)$$

avec  $\vec{e}_1 = (1/\sqrt{2})(\vec{e}_x - \vec{e}_y)$  et  $\vec{e}_2 = (1/\sqrt{2})(\vec{e}_x + \vec{e}_y)$

Dans l'hypothèse de petites variations autour de la direction de facile aimantation du fer, on effectue un développement limité au second ordre en  $\theta = 0$  ( $\alpha = \pi/4$ ). Cela conduit à :

$$E_v \stackrel{\theta=0}{=} A \left( \frac{\partial \theta}{\partial y} \right)^2 + \left( k + \mu_0 h_e M_s m_{AF}(x, y) / \sqrt{8} \right) \theta^2 + A \left( \frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 - \mu_0 h_e M_s m_{AF}(x, y) \theta / \sqrt{2} \quad (2.3)$$

avec  $m_{AF}(x, y)$  une distribution valant 1 lorsque la coordonnée  $(x, y)$  se place dans une cristallite d'axe  $c$  parallèle à  $[100]$  (par rapport à la maille du platine), et  $-1$  lorsque  $(x, y)$  se place dans une cristallite d'axe  $c$  parallèle à la direction  $[010]$  (par rapport à la maille du platine). Écrite sous forme intégrale, cette énergie peut être minimisée par une méthode variationnelle. Dans ce cas, le développement de l'équation d'Euler conduit à l'équation différentielle :

$$\frac{\mu_0 h_e M_s m_{AF}(x, y)}{\sqrt{2}} + \left( 2k + \frac{\mu_0 h_e M_s m_{AF}(x, y)}{\sqrt{2}} \right) \theta - 2A \frac{\partial^2 \theta}{\partial y^2} - 2A \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} = 0 \quad (2.4)$$

Cette équation peut être plus facilement résolue dans l'espace de Fourier. Posons :

$$q_1^2 = \frac{\mu_0 h_e M_s}{A \sqrt{8}} \quad (2.5)$$

et

$$q_0^2 = q_1^2 + \frac{1}{\delta^2} \quad (2.6)$$

avec

$$\delta = \sqrt{\frac{A}{k}} \quad (2.7)$$

$$\theta(q_x, q_y) = \frac{q_1^2}{q_0^2 + (q_x^2 + q_y^2)} m_{AF}(q_x, q_y) \quad (2.8)$$

En tout point, l'angle  $\theta$  correspond à la fluctuation d'angle autour de la direction de facile aimantation. Cette distribution d'orientation est source d'un champ de fuite qui se calcule en passant par une distribution de charges :  $\rho = \mu_0 \text{div } \vec{M}_F$ . Nous nous plaçons dans le cas de fluctuations autour de la direction de facile aimantation du fer, c'est-à-dire que l'aimantation est située selon le vecteur  $\vec{e}_2$ . Compte-tenu de l'écriture de ce vecteur dans la base  $(e_x, e_y)$ ,

$$\rho(x, y) \stackrel{\theta=0}{=} \mu_0 M_s \frac{1}{\sqrt{2}} \left( \frac{\partial \theta(x, y)}{\partial y} - \frac{\partial \theta(x, y)}{\partial x} \right) \quad (2.9)$$

On note désormais  $q = \sqrt{q_x^2 + q_y^2}$  et  $r = (q_x - q_y)/\sqrt{2}$ . On en déduit la distribution de charge dans la couche ferromagnétique :

$$\rho(q_x, q_y) = -\mu_0 M_s \frac{r q_1^2}{q_0^2 + q^2} m_{AF}(q_x, q_y) \quad (2.10)$$

ou encore

$$\rho(q_x, q_y) = 2\mu_0 M_s f(q_x, q_y) m_{AF}(q_x, q_y) \quad (2.11)$$

avec

$$f(q_x, q_y) = -\frac{1}{2} \frac{r q_1^2}{q_0^2 + q^2} \quad (2.12)$$

Or le champ rayonné à l'altitude  $z$  est donné par la résolution d'une équation de Poisson. Dans l'hypothèse d'une couche ferromagnétique mince d'épaisseur  $e_f$ , le champ s'exprime par :

$$H_z = \frac{\rho(q_x, q_y)}{2} e_f e^{-qz} \quad (2.13)$$

Le champ rayonné par l'échantillon à l'altitude  $z$  est donc caractérisé, dans l'espace de Fourier, par une fonction  $f$  agissant comme un filtre. Ce filtre laisse apparaître une distance caractéristique qui est liée à la taille moyenne des fluctuations. En pratique, la mesure de ces fluctuations a été réalisée par MFM. Il faut tenir compte des caractéristiques de cet instrument pour déterminer le signal mesuré. La taille caractéristique effectivement observée est ainsi une convolution de la taille liée au matériau (donnée par la fonction  $f$ ) et de filtres liés à l'instrument, et que nous nous proposons maintenant d'évaluer. Le MFM est utilisé en mode de contact intermittent ou *tapping*. Dans une approche simplificatrice de la description de l'interaction entre le microscope et l'échantillon, la pointe MFM peut être modélisée soit comme une charge magnétique, soit selon un modèle étendu. Le modèle ponctuel [156] a l'avantage d'une grande simplicité de calcul, mais ne permet pas de rendre compte parfaitement du champ de fuite issu de la pointe [157]. Nous donnerons les résultats pour une pointe monopôle et pour une pointe étendue modélisée de la façon la plus simple, comme un dipôle magnétique ponctuel oscillant selon  $z$ . Dans ces deux cas, le signal est proportionnel à la dérivée du champ selon  $z$ , respectivement soit une dérivée d'ordre 1 ou d'ordre 2 [158]. Par ailleurs, nous considérerons également le cas de la dérivée d'ordre 0, qui correspond à l'information intrinsèque sur les fluctuations, indépendamment de la mesure à l'aide du MFM. Selon l'ordre retenu pour la dérivation, on obtient pour le signal :

$$s_0(q_x, q_y) \propto H_z = M_s f(q_x, q_y) f_0(q, z) m_{AF}(q_x, q_y) e_f \quad (2.14)$$

$$s_1(q_x, q_y) \propto -\partial H_z / \partial z = M_s f(q_x, q_y) f_1(q_x, q_y, z) m_{AF}(q_x, q_y) e_f \quad (2.15)$$

$$s_2(q_x, q_y) \propto -\partial^2 H_z / \partial z^2 = -M_s f(q_x, q_y) f_2(q_x, q_y, z) m_{AF}(q_x, q_y) e_f \quad (2.16)$$

avec  $f_i(q, z) = q^i e^{-qz}$ .

Pour déterminer une longueur caractéristique, nous pouvons calculer la position du maximum du signal  $s_i(q_x, q_y)$  ( $i \geq 0$ ). Pour ce faire, nous pouvons d'une part nous placer dans



Matériau	A	k
Fe	$8,3 \times 10^{-12}$ J/m	48 kJ/m <sup>3</sup>
FeNi	$13 \times 10^{-12}$ J/m	0

TAB. 2.6 – Constantes d'échange et d'anisotropie pour le fer et le permalloy utilisées pour les applications numériques.

la direction qui maximise  $r$ , caractérisée par  $q_x = -q_y = q/\sqrt{2}$ . La distribution d'orientation  $m_{AF}(x, y)$  étant liée aux événements microscopiques qui ont donné lieu à la croissance des variants (voir paragraphe 2.1.3), nous la supposons aléatoire et sans corrélation. Dans l'espace de Fourier, son intensité  $m_{AF}(q_x, q_y)$  sera constante pour tous les vecteurs  $q$  décrivant une période spatiale plus grande que la taille des variants. Pour les vecteurs  $q$  de fréquence plus élevée que cette coupure  $m_{AF}(q_x, q_y)$  est nul. Notre étude se plaçant bien évidemment en deçà de cette coupure, le maximum du signal peut être déterminé par la seule étude des fonctions de réponse  $f(q_x, q_y)f_i(q, z)$  ( $i \geq 0$ ). La simplicité du modèle proposé permet de déterminer cette position analytiquement.

$$\frac{\partial(f(q_x, q_y)f_i(q, z))}{\partial q} = -\frac{q_1^2 q^i}{q_0^2 + q^2} \left( \frac{2q^2}{q_0^2 + q^2} + qz - (i+1) \right) e^{-qz} \quad (i \geq 0) \quad (2.17)$$

L'extremum  $q_m$  de la fonction de réponse est la solution réelle de l'équation du troisième degré :

$$2q_m^2 + (q_0^2 + q_m^2)(q_m z - (i+1)) = 0 \quad (i \geq 0) \quad (2.18)$$

Dans l'espace direct, la longueur caractéristique est alors donnée par  $t_c = 2\pi/q_m$ . La figure 2.51 donne une illustration de la fonction de réponse dans le cas des deux modèles de pointe MFM, où le maximum de la réponse est de l'ordre de grandeur de 100 nm à 500 nm en fonction de la nature de la couche ferromagnétique et du modèle de pointe. La constante  $z$  a été choisie en fonction des caractéristiques de la pointe du MFM. Le rayon de courbure de la pointe est proche de 10 nm d'après les indications du fabricant, et l'épaisseur de la couche magnétique déposée au-dessus est de 40 nm. D'autre part, l'acquisition du signal magnétique est effectuée à 25 nm au-dessus de la surface de l'échantillon. Nous supposons dans ces conditions que la hauteur  $z$  moyenne est de l'ordre de 60 nm.

Les fonctions de réponse  $f(q_x, q_y)f_1(q, z)$  et  $f(q_x, q_y)f_2(q, z)$  étudiées plus haut s'apparentent à des filtres dans l'espace de Fourier, qu'il est possible d'appliquer à une distribution de variants. De façon à rendre compte de notre système, nous choisissons une distribution aléatoire (figure 2.52). Dans l'espace de Fourier, le signal résultant est anisotrope et se caractérise notamment par la présence de deux lobes symétriques par rapport à une droite d'équation  $y = x$ . Cette caractéristique provient de la présence d'un terme  $q_x - q_y$  dans l'expression du champ rayonné par la couche. Cette annulation, qui n'apparaît pas dans les mesures expérimentales, est probablement liée au caractère simplifié du modèle. La rugosité à l'interface entre l'antiferromagnétique et le ferromagnétique n'est pas prise en compte dans notre modélisation, or elle est de nature à produire des variations locales de densité de charges magnétiques. L'expression de la densité de charge réelle peut ainsi ne pas présenter une telle annulation selon la direction  $q_x = q_y$ . D'autre part, la modélisation effectuée ici suppose une équipartition entre des domaines alignés selon  $\vec{e}_x$  et  $\vec{e}_y$ . Cela sera le cas si le recuit sous champ

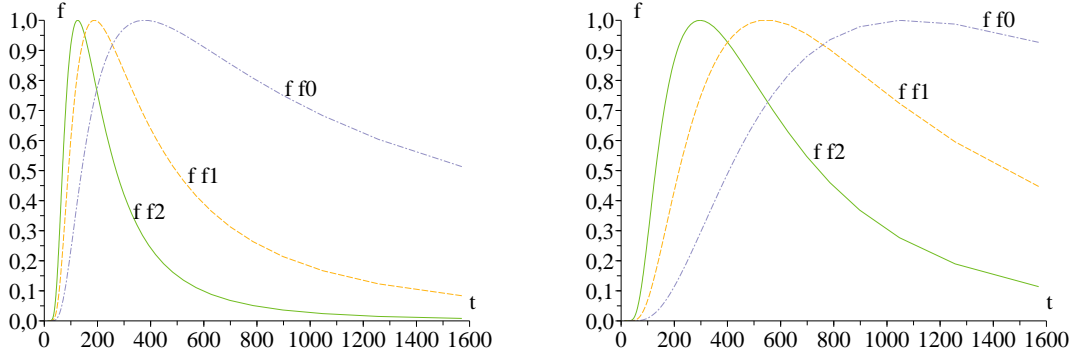


FIG. 2.51 – Intensité normalisée au maximum des fonctions de réponse  $f f_0$  (trait tireté mixte, bleu, courbe la plus à droite),  $f f_1$  (trait pointillé simple, jaune, courbe du centre) et  $f f_2$  (trait plein, vert, courbe plus à gauche), dans la coupe  $q_x = -q_y$ . Les courbes sont calculées pour  $z = 60$  nm,  $\mu_0 h_e = 3$  mT, avec les constantes d'anisotropie et d'échange du fer (courbes de gauche) et du permalloy (courbes de droite). L'abscisse donne la période sondée de l'espace direct (nm), l'ordonnée donne l'amplitude normalisée de la fonction de réponse considérée. Le maximum  $t_c$  de la fonction de réponse peut aisément être observé en abscisse.

est idéal. En pratique, une population minoritaire de variants peut ne pas s'orienter dans cette direction, si la température ou la durée du recuit sont insuffisants pour que l'évènement de rotation se produise. L'échantillon contiendra alors des domaines selon  $\vec{e}_x$ ,  $\vec{e}_y$  mais aussi  $-\vec{e}_x$  et  $-\vec{e}_y$ . Cela est de nature à diminuer le contraste de l'anisotropie des filtres.

Pour obtenir des résultats plus précis, il serait nécessaire de recourir à des simulations plus complexes prenant en compte la forme de la pointe du MFM. Des études parues dans la littérature donnent des détails concernant cette modélisation, soit dans l'espace de Fourier [159], soit dans l'espace direct ([160, 161, 162]).

Il a déjà été observé dans la littérature que l'application d'un champ fait disparaître les ondulations [137]. Or il est possible de prendre en compte dans notre modélisation le champ appliqué. Si ce champ est parallèle au champ de décalage et de même sens, nous restons dans l'hypothèse des petites variations autour d'une position d'équilibre. Par ailleurs si le champ appliqué est suffisamment faible, il est possible de négliger le couplage entre les moments non compensés d'interface de l'antiferromagnétique et le champ. Dans ces conditions, l'application d'un champ se traduit par un terme  $-\mu_0 h M_s \vec{e}_1$  dans l'expression de l'énergie, d'où un terme supplémentaire dans l'expression de  $q_0$  :

$$q_0^2 = q_1^2 + \frac{1}{\delta^2} + \frac{\mu_0 h M_s}{2A} \quad (2.19)$$

La taille caractéristique des fluctuations est directement liée à  $q_0^2$ . Ce dernier s'écrit comme la somme de trois termes, l'un lié à l'échange entre le ferromagnétique et l'antiferromagnétique, l'autre lié à l'anisotropie du ferromagnétique, le dernier de champ extérieur.

Dans le cas du fer, le terme d'anisotropie domine très largement les deux autres. Si l'anisotropie d'échange est bien à la source du phénomène de fluctuations, les principales caractéristiques des fluctuations observées sur les images sont déterminées par les propriétés du ferromagnétique. Dans le cas d'un ferromagnétique à forte anisotropie, on peut se placer à la

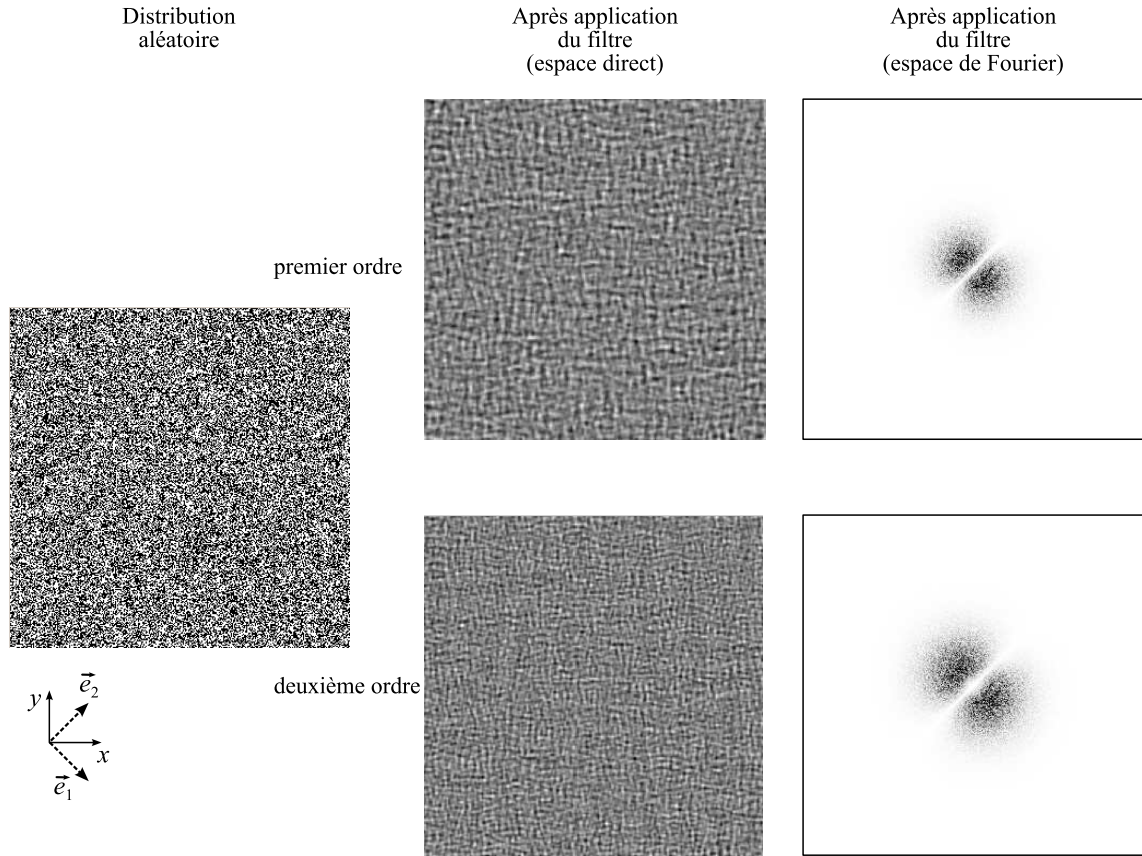


FIG. 2.52 – Simulation numérique des fluctuations, par application de filtres bidimensionnels à la distribution d'orientation. À gauche, distribution aléatoire d'orientation : les cases sombres correspondent à l'orientation  $\vec{e}_y$ , les cases claires à l'orientation  $\vec{e}_x$ . Les deux images du haut correspondent à l'application du filtre correspondant à un modèle d'interaction avec la pointe MFM selon la dérivée première, les deux images du bas à l'interaction selon un modèle de dérivée seconde. Les images comportent 512 points de côté. Chaque point représente un variant, dont la taille peut être fixée à 8 nm.

limite  $q_0 \rightarrow \infty$ . Dans ce cas,  $\lim_{q_0 \rightarrow \infty} q_m = (i+1)/z$ . Avec les valeurs numériques retenues et pour  $z = 60$  nm,  $t_c = 125$  nm est ainsi la limite inférieure de la taille moyenne des fluctuations.

L'étude du système Fe/MnPt réalisée au paragraphe 2.2.4 a également permis d'étudier l'effet du champ sur les fluctuations observées. L'observation expérimentale révèle qu'en apparence les ondulations disparaissent après application d'un champ parallèle et de même sens que le champ de décalage (figure 2.53). Cependant, la transformée de Fourier des images MFM montre toujours la présence d'une dimension caractéristique : la disparition n'est ainsi qu'apparente et la taille caractéristique n'est pas changée.

D'après la modélisation retenue, la taille moyenne des fluctuations est inversement proportionnelle à  $q_0$ . Or dans le cas d'un ferromagnétique sans anisotropie, la constante  $q_0$  est très faible. Les observations effectuées dans le cas du système FeNi/MnPt montrent bien une taille caractéristique de la fluctuation plus grande que pour le cas du système Fe/MnPt (figure 2.54), de l'ordre de 1  $\mu$ m. De plus, dans ce cas, un champ extérieur de 30 mT devrait conduire à un effet bien plus visible que dans le cas d'un ferromagnétique à forte anisotropie.

Les calculs que nous avons menés montrent qu'il est possible d'expliquer l'existence et les principales caractéristiques des fluctuations de contrastes observées en MFM. Le modèle retenu est simplifié pour permettre des calculs analytiques et ne peut pas rendre compte quantitativement de la taille ou de l'intensité des fluctuations, mais il permet déjà de comparer qualitativement la situation de différents matériaux ou de différentes conditions de mesure, en obtenant un ordre de grandeur compatible avec les observations. Seule l'introduction d'un couplage d'échange ( $h_e \neq 0$ ) permet l'apparition de fluctuations. En revanche, les caractéristiques de ces fluctuations sont grandement liées aux propriétés du ferromagnétique comme son anisotropie. Les conditions instrumentales, comme la hauteur de vol, influencent également les structures observées. Il devrait être possible de mesurer expérimentalement l'effet de la hauteur de vol sur la taille caractéristique. Cependant ce travail se trouve compliqué par la faiblesse du signal dans le cas de fluctuations d'aimantation planaire, ainsi que par l'épaisseur de la couche ferromagnétique déposée sur la pointe. Il n'est ainsi pas possible de se placer à une hauteur  $z$  différente de plus de 5 nm à 10 nm de celle choisie ici. Cependant le fait qu'aucune fluctuation ne soit observée sur une couche de permalloy déposée sur platine (figure 2.48) montre que le phénomène observé n'est pas simplement de nature instrumentale. La rugosité à l'interface entre le ferromagnétique et l'antiferromagnétique, ainsi que la rugosité de surface qui en découle, pourraient également induire une hétérogénéité de l'aimantation. Cependant, la faible valeur de rugosité des couches épitaxiées limite la portée de cet effet. Nous concluons que seul le couplage d'échange et, dans notre cas, le désordre associé à cette interaction, peut être à l'origine des fluctuations d'aimantations observées.

## 2.3 Simulation numérique

### 2.3.1 Modélisation des retournements

De façon à interpréter les mesures de cycles d'hystérésis, nous avons réalisé des simulations de cycles d'hystérésis effectuées dans l'hypothèse de retournement par rotation cohérente du ferromagnétique. Cette hypothèse, très utilisée dans la littérature, a l'avantage de la simplicité pour la réalisation d'algorithmes. Son inconvénient est qu'elle ne permet pas de rendre compte de la valeur du champ coercitif pour les mesures faites le long de l'axe de facile aimantation du ferromagnétique. Selon cet axe, le retournement se fera en effet à l'aide d'un mécanisme différent, comme la propagation de parois. Cependant, le modèle employé fournira

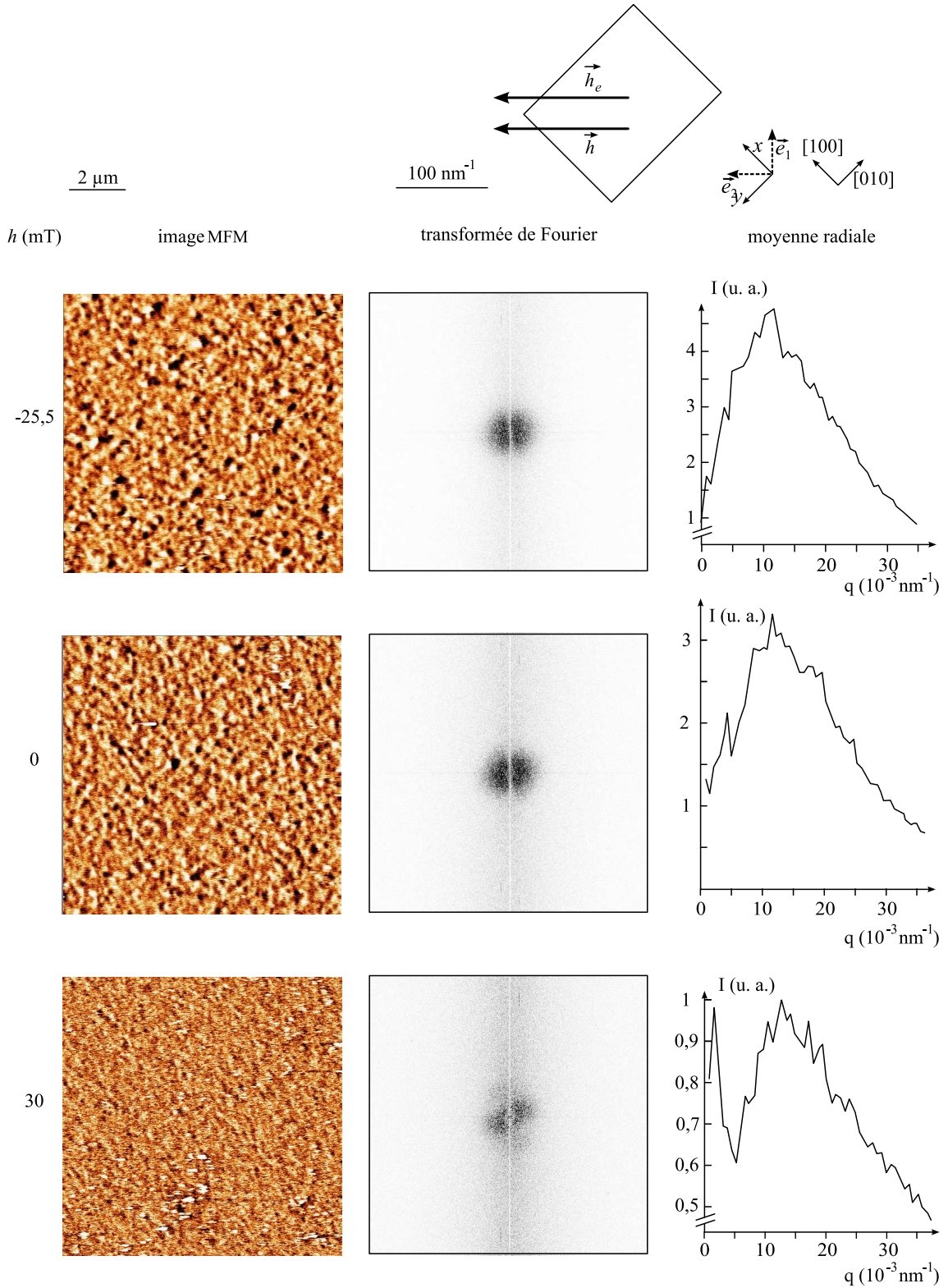


FIG. 2.53 – Observation de fluctuations dans le cas du système Fe/MnPt, dans le cas de l'application d'un champ extérieur suffisant pour saturer l'échantillon, dans le sens favorable à l'échange (champ de signe positif) ou défavorable à l'échange (champ de signe négatif). À gauche, images MFM mesurées sur un échantillon Pt (3 nm)/Fe (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). Au centre, intensité de la transformée de Fourier de chaque image. À droite, moyenne radiale de la transformée de Fourier, montrant une dimension caractéristique  $t_c$  donnée par  $t_c = 2\pi/q_m \simeq 500 \text{ nm}$ . Dans la transformée de Fourier, la ligne blanche verticale est liée au balayage par la pointe MFM.



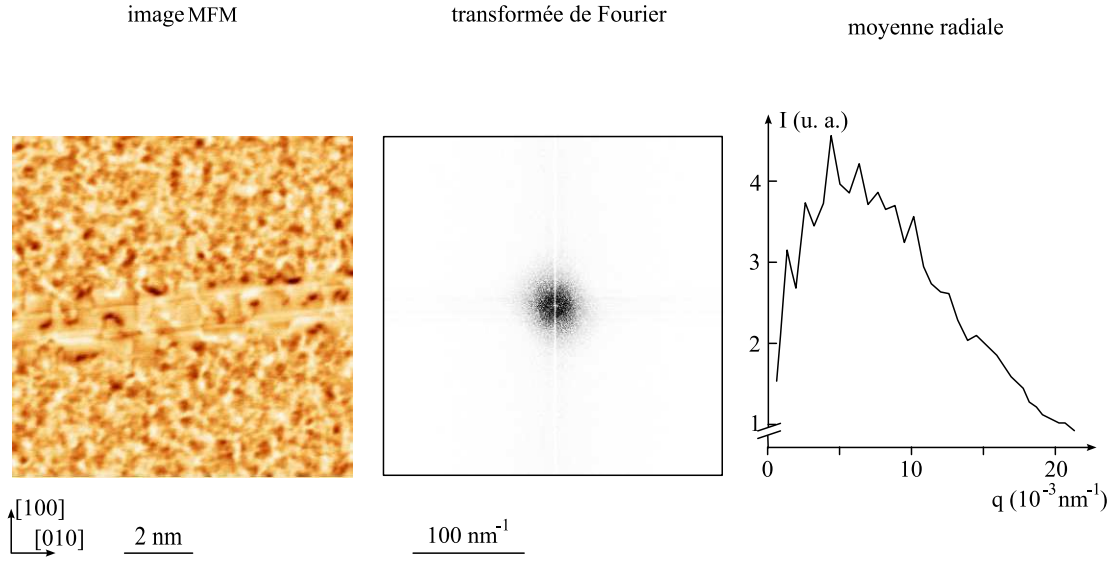


FIG. 2.54 – Observation de fluctuations dans le cas du système FeNi/MnPt. À gauche, image MFM mesurée sur un échantillon Pt (3 nm)/Fe<sub>19</sub>Ni<sub>81</sub> (10 nm)/MnPt (30 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100). Au centre, intensité de la transformée de Fourier de la première image. À droite, moyenne radiale de la transformée de Fourier, montrant une dimension caractéristique  $t_c = 2\pi/q_m \simeq 1 \mu\text{m}$ . La rayure traversant l'image magnétique est d'origine topographique.

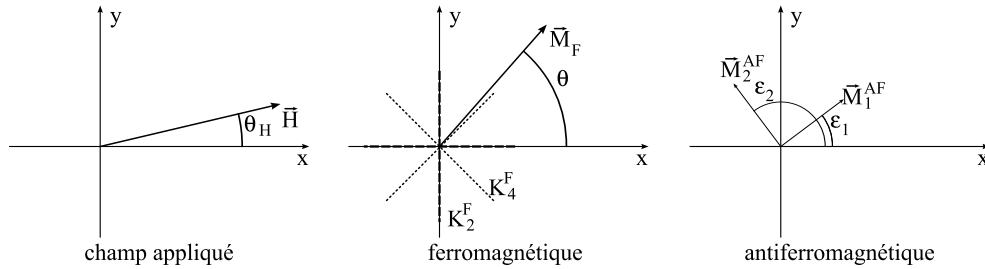


FIG. 2.55 – Définitions des angles utilisés dans le modèle.

un majorant du champ coercitif. D'autre part, au delà du problème de la prédictibilité du champ coercitif, nous nous intéresserons à la forme des cycles d'hystérésis, qui donne accès à une projection du vecteur d'aimantation dans la direction de mesure, et est donc révélatrice des mécanismes de la phase de rotation cohérente du retournement. Pour ces raisons, nous avons entrepris d'étudier le système à l'aide d'un tel modèle.

Le modèle considéré tient compte de plusieurs termes (figure 2.55) :

**L'énergie Zeeman** Ce terme traduit le couplage entre le ferromagnétique et le champ extérieur  $\vec{H}$ . Il s'agit du moteur du renversement de l'aimantation.

**Le couplage entre le ferromagnétique et les moments piégés de l'antiferromagnétique** Nous supposons en effet que recuit le sous champ a pour effet de piéger des moments de l'antiferromagnétique dans la direction du champ extérieur. Nous ferons en outre l'hypothèse

que ce phénomène se réalise au travers d'un couplage avec le ferromagnétique et que ce couplage se traduit par un champ effectif  $\vec{h}$ .

**Les anisotropies d'ordre 2 et 4 du ferromagnétique** Les expériences réalisées utilisent le fer comme ferromagnétique. Celui-ci présente deux axes de facile aimantation perpendiculaires entre eux et orientés dans les directions  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$  du MgO. En outre, pour des raisons liées au processus d'élaboration et déjà évoquées, nous introduirons une anisotropie d'ordre 2.

**L'anisotropie d'ordre 2 de l'antiferromagnétique** La structure magnétique de MnPt lui impose en effet des moments parallèles à l'axe  $c$ . L'anisotropie qui en résulte est d'ordre 2.

**Le couplage d'interface entre le ferromagnétique et l'antiferromagnétique** Nous supposons que ce couplage est d'ordre 1, c'est-à-dire lié au cosinus de l'angle entre les moments d'interface de la couche ferromagnétique et de la couche antiferromagnétique.

L'énergie libre par unité de volume du système s'écrit alors :

$$G = -\vec{M}^F \cdot \vec{H} - \vec{M}^F \vec{h} - K_2^F \cos^2 \theta + K_4^F (\cos^2 \theta - \sin^2 \theta)^2 - K_2^{AF} (\cos^2 \epsilon_1 + \sin^2 \epsilon_2) - \frac{J}{e} \cdot \frac{\vec{M}^F}{M^F} \left( \frac{\vec{M}^{AF_1} + \vec{M}^{AF_2}}{M^{AF}} \right) \quad (2.20)$$

On déduit, par dérivation et projection, l'expression du champ effectif.

Pour le ferromagnétique,  $\vec{H}^F = -\frac{\partial G}{\partial \vec{M}^F}$ .

$$H_x^F = H_x + h_x + 2 \frac{K_4^F}{M^F} \sin^2 \theta \cos \theta + 2 \frac{K_2^F}{M^F} \cos \theta + \frac{J/e}{M_F} (\cos \epsilon_1 + \cos \epsilon_2) \quad (2.21)$$

$$H_y^F = H_y + h_y + 2 \frac{K_4^F}{M^F} \sin \theta \cos^2 \theta + M_F (\sin \epsilon_1 + \sin \epsilon_2) \quad (2.22)$$

Pour l'antiferromagnétique,

$$H_x^{AF_1} = \frac{J/e}{M^{AF}} \cos \theta + \frac{2K_2^{AF}}{M^{AF}} \cos \epsilon_1 \quad (2.23)$$

$$H_y^{AF_1} = \frac{J/e}{M^{AF}} \sin \theta \quad (2.24)$$

$$H_x^{AF_2} = \frac{J/e}{M^{AF}} \cos \theta + \frac{2K_2^{AF}}{M^{AF}} \sin \epsilon_2 \quad (2.25)$$

$$H_y^{AF_2} = \frac{J/e}{M^{AF}} \sin \theta \quad (2.26)$$

L'algorithme de minimisation<sup>6</sup> applique cette excitation magnétique effective de manière itérative aux orientations des moments magnétiques jusqu'à obtenir une position d'équilibre.

---

<sup>6</sup>Le programme de simulation numérique a été écrit spécialement par Robert Stamps (*University of Western Australia*).

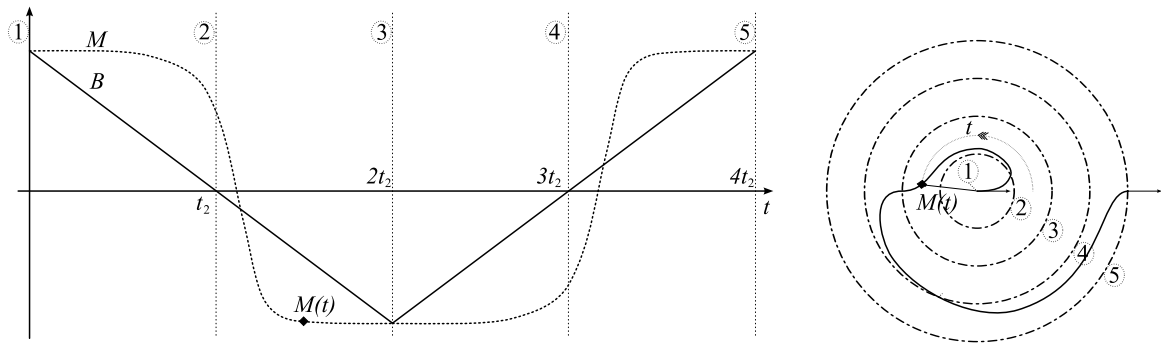


FIG. 2.56 – Présentation de la représentation polaire adoptée pour les simulations. À gauche, évolution temporelle typique du champ  $B$  et de l'aimantation  $M$  au cours d'un cycle d'hystérésis. Les points 1, 2, 3, 4 représentent respectivement la saturation en champ positif, la première annulation du champ, la saturation en champ négatif, la deuxième annulation du champ, la saturation finale en champ positif. À droite, représentation polaire correspondante, où les points 1, 2, 3, 4, correspondant à un instant de la mesure, sont figurés par des cercles concentriques.

### 2.3.2 Représentation adoptée

Pour représenter l'évolution au cours du temps de l'orientation des aimantations, nous avons choisi un diagramme en coordonnées polaires (figure 2.56). Chaque point du graphe de coordonnées  $(\theta, \rho)$ , est associé à un couple de valeur  $(\theta, t)$ . Il est ainsi possible de suivre l'évolution dans le temps de l'orientation prise par les vecteurs d'aimantation, le temps étant représenté par la coordonnée radiale. Le champ évolue avec le temps, passant de la saturation ( $t = 0, \rho = 0$ ) à la première annulation du champ ( $t = t_2, \rho = \rho_2$ ) puis à la deuxième saturation ( $t = 2 \times t_2, \rho = 2 \times \rho_2$ ), à la deuxième annulation ( $t = 3 \times t_1, \rho = 3 \times \rho_2$ ) et enfin à la saturation finale ( $t = 4 \times t_2, \rho = 4 \times \rho_2$ ). La direction de l'aimantation à  $t = 0$  et  $t = 4 \times \rho_2$  est précisée sur les courbes à l'aide de flèches. Ces états correspondant tous deux à la même saturation, les deux directions d'aimantation correspondantes sont parallèles.

Chaque cercle de la représentation polaire correspond à un instant de l'expérience. Cette représentation fait l'hypothèse que les moments du ferromagnétique et de chacun des variants de l'antiferromagnétique tournent en bloc et sans modification de leurs normes. Ces hypothèses sont compatibles avec celles du modèle. La représentation adoptée présente dans ce cas l'avantage de montrer la succession des étapes du renversement de l'aimantation, qui sans cela serait difficile à reproduire sur papier.

Les figures 2.57 et 2.60 utilisent cette représentation. Elles montrent l'évolution de trois vecteurs dans le temps. Il s'agit d'une part, de l'aimantation du ferromagnétique (en trait plein, bleu). L'aimantation du ferromagnétique porte également deux pointes de flèche en ses extrémités qui indiquent ses directions initiale et finale. Les deux autres courbes, en traits tiretés, donnent l'évolution des aimantations de surface des deux variants du MnPt. La courbe en trait tireté simple (jaune) correspond au variant d'anisotropie magnétique selon [100]. La courbe en trait mixte (vert) correspond au variant d'anisotropie magnétique selon [010].



### 2.3.3 Étude de retournements typiques

Dans cette section, nous utiliserons les valeurs des paramètres qui permettent de rendre compte au mieux des cycles d'hystérésis mesurés. Retenons donc les valeurs suivantes :  $J/M^F = 20$  mT,  $K^{AF}/M^F = 12$  mT,  $K_4^F/M^F = 3,5$  mT,  $K_2^F/M^F = 3$  mT.

#### Influence de la direction de recuit

Effectuons un cycle d'hystérésis en appliquant un champ selon l'angle 0 (direction [100] par rapport au substrat) et observons l'effet de la direction de recuit sous champ sur les propriétés du cycle (figure 2.57). Alors que, pour des spins non compensés parallèles à la direction de mesure, le ferromagnétique s'aligne avec le champ, lorsque le recuit est effectué dans une autre direction, la saturation est plus difficile à obtenir. Cela se remarque dès les plus faibles angles de désaccord, mais cette tendance ne se dément pas pour les très grands angles de désaccord.

Pour quantifier cette tendance, nous représentons le pourcentage d'aimantation atteint à champ nul et dans la zone de saturation, pour chaque direction de recuit (figure 2.58). L'asymétrie se caractérise par une plus forte rémanence dans la direction des moments piégés. Mais lorsque la direction des moments piégés n'est pas la même que celle de la mesure, cette rémanence diminue et marque un minimum pour un certain angle. De même, dans la zone de saturation, une anisotropie peut être trouvée. L'aimantation atteinte dans la zone de saturation est toujours plus faible que pour l'échantillon non recuit, et marque un minimum vers  $100^\circ$  ( $5\pi/9$ ), pour un angle différent du minimum de la rémanence. L'effet mesuré dans la zone de saturation est très faible, puisque dans tous les cas l'aimantation a presque atteint sa valeur nominale. Cependant, cette dépendance angulaire illustre l'existence d'une anisotropie induite par les moments piégés et le fait que cette anisotropie est loin d'avoir une dépendance angulaire simple.

#### Cycle à $\pi/20$

Parmi les angles de mesures possibles pour les cycles d'hystérésis, la mesure faite à quelques degrés d'écart de la direction de moments piégés selon la direction 0 présente un intérêt particulier. En effet, les cycles obtenus dans ces conditions présentent des asymétries caractéristiques de notre système.

Décrivons le cycle en commençant à fort champ (figures 2.59 et 2.60, cas *a*). Dans cette situation, l'aimantation du ferromagnétique est parallèle au champ, c'est-à-dire que le ferromagnétique est saturé. Le couplage avec l'antiferromagnétique est suffisamment fort pour contrebalancer l'anisotropie des variants. Les moments de surface forment ainsi un angle plus faible que l'angle  $\pi/2$  qu'ils formeraient en l'absence de couplage avec l'antiferromagnétique. Lorsque le champ diminue, l'aimantation du ferromagnétique s'écarte de la direction [100] pour se rapprocher d'une direction de facile aimantation. Plus particulièrement, le couplage entre le ferromagnétique et les moments piégés font choisir la direction de facile aimantation la plus proche de la direction des moments piégés. Lorsque le champ s'annule puis devient négatif, le retournement de l'aimantation se produit en deux étapes. Ces deux étapes se distinguent par le signe de la projection transverse de l'aimantation du ferromagnétique. Dans la première étape, ce signe reste le même que ce qu'il était avant le retournement. À mesure que le champ augmente, l'aimantation se rapproche de la direction du champ appliqué par un mouvement de rotation. Cela donne une saturation difficile de l'échantillon. Dans une seconde étape, l'aimantation transverse change brutalement de signe. L'aimantation projetée dans la

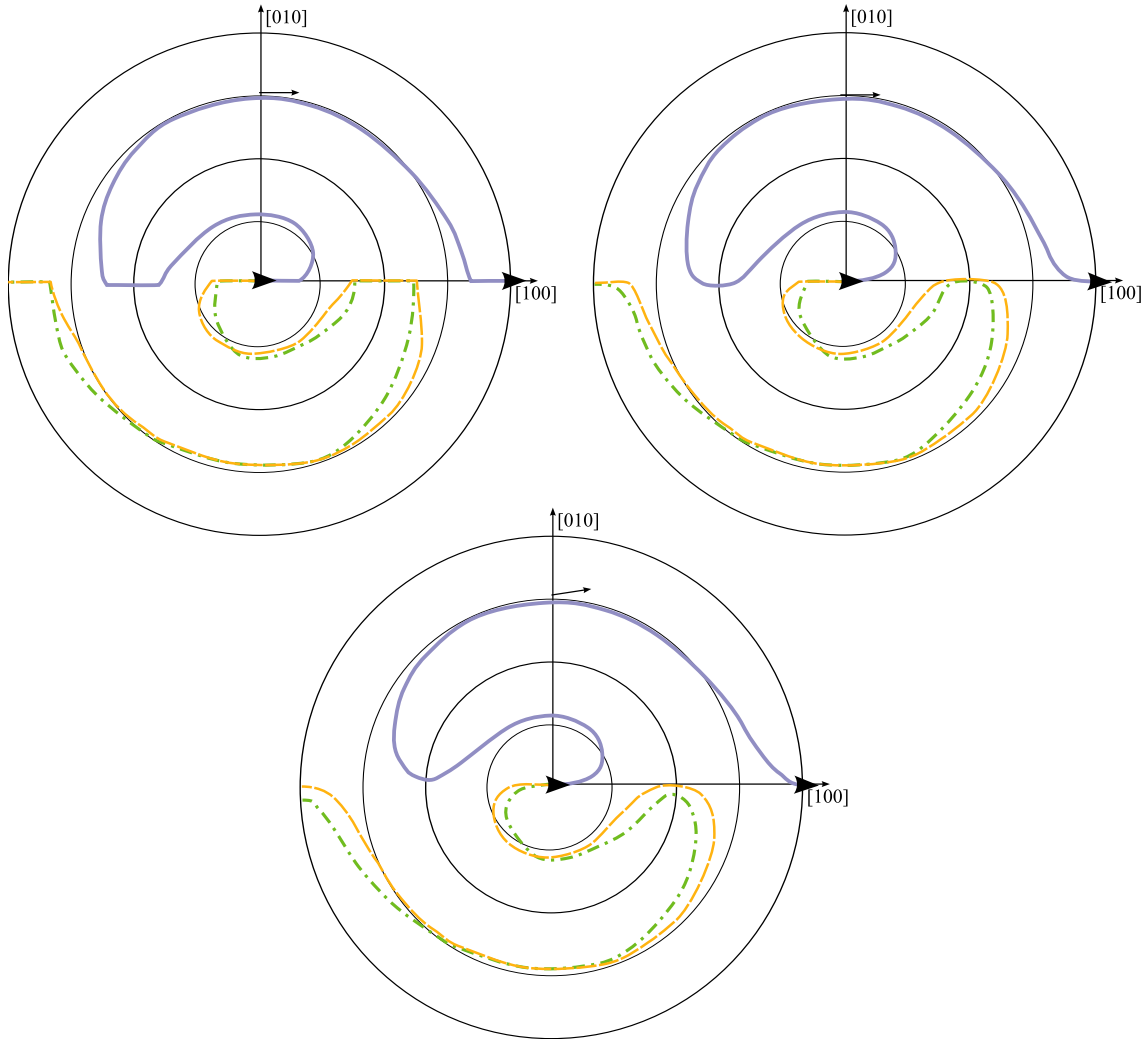


FIG. 2.57 – Simulation de cycle d'hystérésis dans une direction de difficile aimantation du ferromagnétique, pour un faible désaccord d'angle entre la direction des moments piégés et la direction de mesure ( $0$ ,  $\pi/100$  et  $\pi/20$ ). Cette direction est représentée par une flèche. Dans les trois cas, le champ extérieur est appliqué dans la direction  $[100]$ . La description de la représentation graphique est donnée au paragraphe 2.3.2.

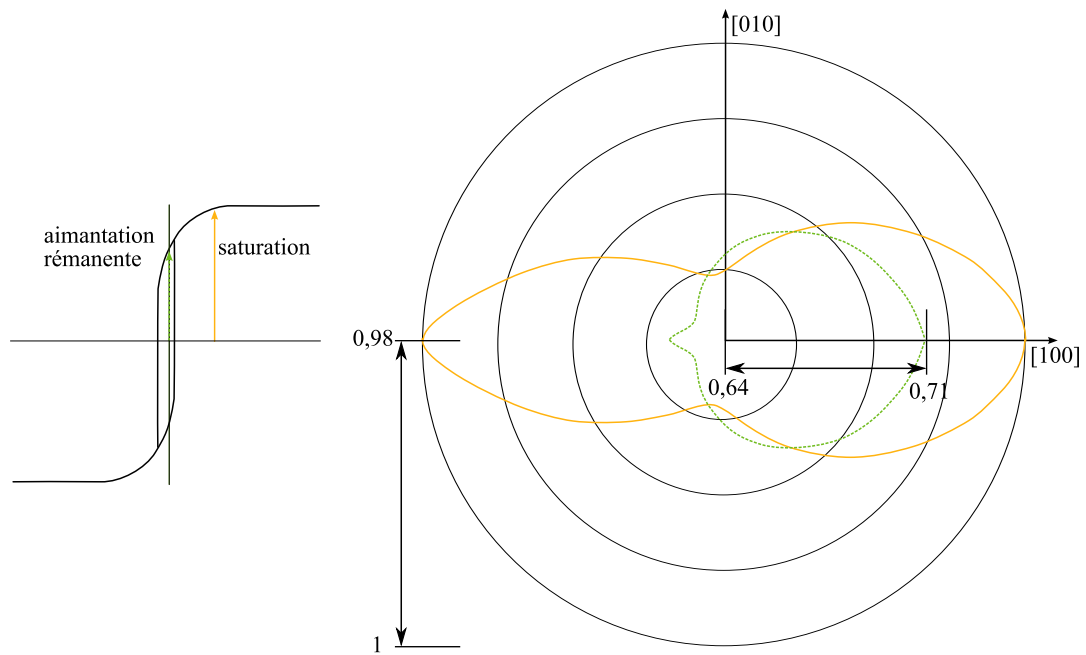


FIG. 2.58 – Aimantation rémanente (trait plein, jaune) et aimantation dans la zone de saturation (pointillés, vert) en fonction de l'angle du champ appliqué lors du recuit sous champ. De façon à mettre en valeur le phénomène montré, l'échelle est différente pour ces deux variables. L'aimantation rémanente vaut ainsi, en coordonnées radiales, entre 0,64 (au centre du cercle) et 0,7 (extremum radial de cette fonction). De même l'aimantation dans la zone de saturation est-elle comprise entre 0,98 (au centre) et 1 (extrémité du cercle). À gauche, un illustre la position des points retenus. L'aimantation est normée à 1.

direction de mesure n'est pas continue, bien que l'écart soit faible. Cette légère discontinuité n'a pas été observée dans les mesures, et on peut associer cette absence d'observation à un effet de moyenne sur l'ensemble de l'échantillon. Lorsque le champ augmente encore, l'aimantation tend à se rapprocher de la direction du champ appliqué. Pendant toutes ces étapes, l'angle entre les directions des deux aimantations de surface des deux variants reste à peu près constant, et la direction de l'aimantation du ferromagnétique est à peu près médiane de celle des deux variants. Le mécanisme pour le retournement opposé, cependant la présence d'un couplage avec les moments piégés dissymétrise les deux branches du retournement. En effet, il a été expliqué que dans la première partie du retournement, la direction du ferromagnétique s'écarte légèrement de la direction de saturation avant de s'en rapprocher à mesure que le champ extérieur augmente. Cette phase, pendant laquelle l'aimantation se rapproche de la direction du champ extérieur, correspond à la partie du cycle d'hystérésis où l'on observe une difficulté pour atteindre la saturation. Cependant, bien que le mécanisme de retournement soit le même dans les deux branches du cycle, la forme du cycle d'hystérésis n'est pas la même pour les deux branches. Cela tient à la présence du couplage entre les moments piégés et le ferromagnétique. En effet, le ferromagnétique a tendance à s'orienter dans une direction proche de sa facile aimantation. Lorsque les moments piégés facilitent cette orientation, il en résulte, dans une direction de retournement, qu'il est beaucoup plus difficile d'obtenir la saturation que dans l'autre direction de retournement.

Dans le mécanisme proposé ici, les moments antiferromagnétiques non piégés se retournent en raison de leur couplage avec les moments du ferromagnétique. Cela est lié à l'intensité du couplage d'interface, qui peut contrebalancer l'anisotropie de l'antiferromagnétique. L'évolution angulaire obtenue pour les moments de l'antiferromagnétique est compatible avec celle proposée par la réf. [163], dans laquelle les comportements de l'antiferromagnétique sont classés en deux catégories, les comportements où l'antiferromagnétique retrouve son orientation initiale après une brève excursion en angle, et les comportements où l'antiferromagnétique se retourne.

### Mesures à différents angles

Considérons ici un recuit sous champ selon une direction  $\pi/4$ , et simulons des mesures réalisées dans différentes directions. L'évolution de la forme des cycles montre des propriétés comparables à celles observées dans les mesures. En effet, ainsi qu'il a été expliqué dans le cas du cycle à  $\pi/20$ , le couplage avec les moments piégés introduit une asymétrie dans les branches gauche et droite du retournement du cycle.

La forme du cycle d'hystérésis, révélatrice du processus de renversement de l'aimantation, contient plus d'informations que les seules valeurs des champs coercitifs et d'échange. Dans le cas que nous avons simulé, la forme des cycles montre une évolution compatible avec celle observée dans les mesures expérimentales (figure 2.32).

D'une part, les graphes simulés montrent les caractéristiques d'anisotropie attendues pour le fer. L'angle  $\pi/4$  (direction [110] par rapport au substrat) correspond à une direction de facile aimantation et se caractérise par un renversement de l'aimantation brutal. L'angle 0 (direction [100] par rapport au substrat) correspond en revanche à un retournement moins brutal, correspondant à une direction de difficile aimantation.

D'autre part, l'anisotropie induite par le champ de décalage conduit à une brisure de symétrie dans le cycle d'hystérésis. Les branches correspondant respectivement à la saturation en champ positif croissant et à la saturation en champ négatif décroissant ne présentent

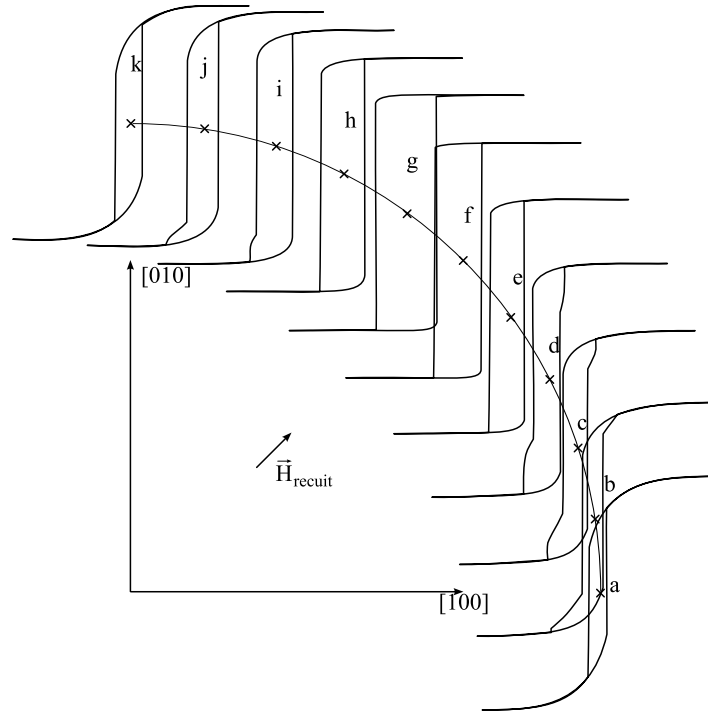


FIG. 2.59 – Cycles d'hystérésis simulés pour différents angles de mesure (cycles de a à k), dans le cas d'un recuit effectué en présence d'un champ orienté selon  $[110]$ .

pas les mêmes propriétés. Plus précisément, pour les angles de champ de mesure décalés de quelques degrés par rapport à l'angle 0, la branche correspondant à la saturation en champ négatif décroissant montre une étape de saturation plus difficile. Cette asymétrie entre les deux branches du cycle rappelle celle observée dans les mesures pour un angle proche de  $\pi/2$  (figure 2.31).

Lorsque l'angle de la mesure est augmenté, une zone de difficile saturation apparaît sur la deuxième branche de l'hystérésis. Cette deuxième zone croît corrélativement à la diminution de la première.

### 2.3.4 Propriétés du champ de décalage

Nous considérons ici le champ de décalage, c'est-à-dire la demi-somme algébrique des deux champs annulant l'aimantation de l'échantillon. Dans un modèle simple, ce décalage traduit l'existence d'un plan non compensé de spins de l'antiferromagnétique à l'interface entre l'antiferromagnétique et le ferromagnétique et donne la valeur du champ effectif appliqué par la couche d'antiferromagnétique sur la couche ferromagnétique. Cependant, cette définition n'est valable que dans le cas d'interfaces parfaites et de moments antiferromagnétiques figés. Dans notre cas, l'interface ne sera sans doute pas parfaite et aura une certaine rugosité. D'autre part, les anisotropies choisies dans la simulation sont telles que les moments d'interface ne sont pas figés. Nous supposons cependant qu'il existe dans l'antiferromagnétique des moments dont l'orientation est figée et qui sont couplés par échange avec le ferromagnétique. Le rôle des moments piégés dans l'apparition du décalage de cycle a déjà été proposé par plusieurs auteurs, même si la localisation exacte de ces moments est difficile à connaître. Certains auteurs les

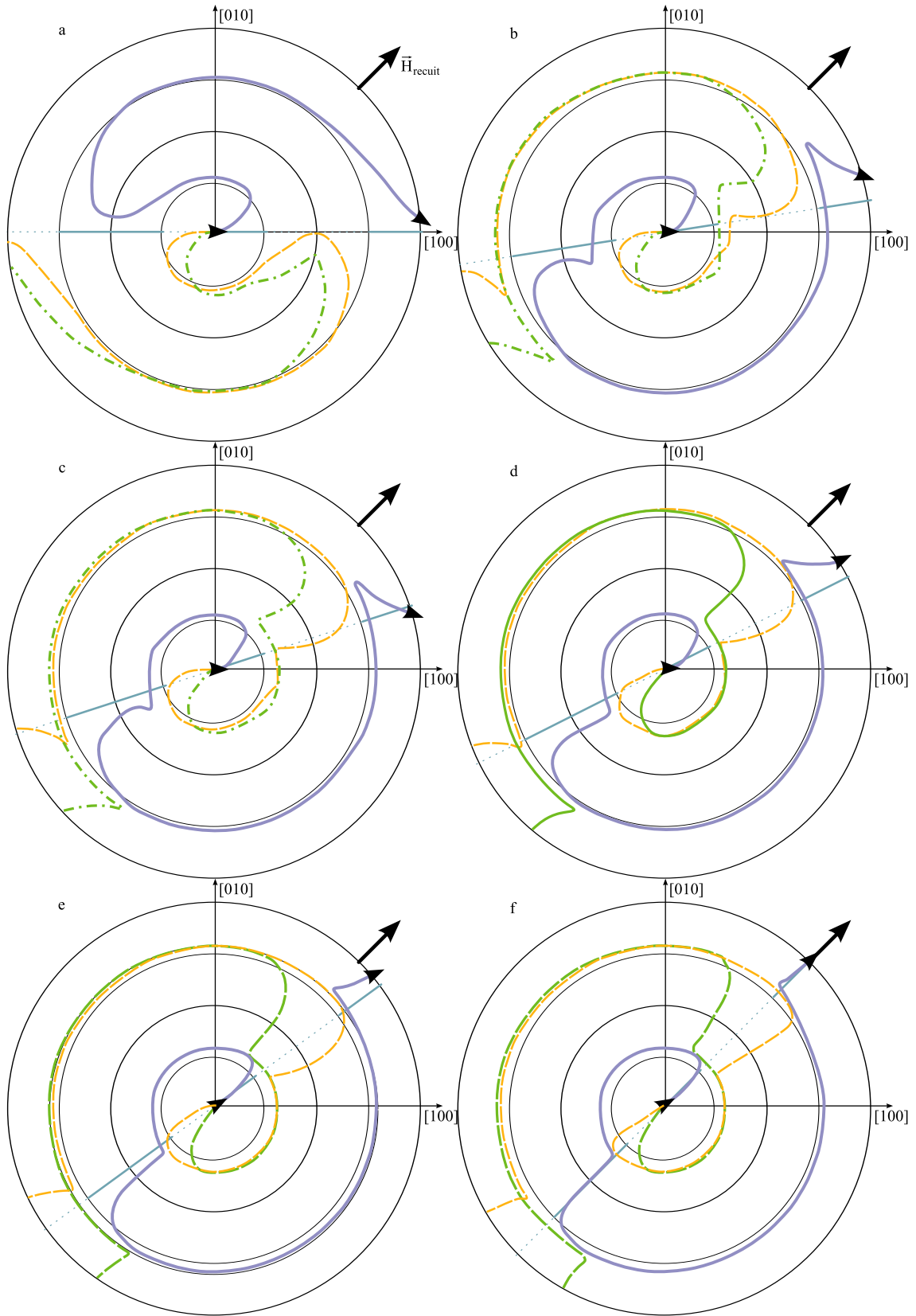


FIG. 2.60 – Processus de retournement pour différents angles de mesure, dans le cas d'un recuit effectué en présence d'un champ orienté selon  $[110]$  (direction représentée par une flèche). Les lettres de a à f correspondent à différentes directions d'application du champ lors de la mesure et correspondent aux cycles tracés sur la figure 2.59. La description de la représentation est fournie au paragraphe 2.3.2.

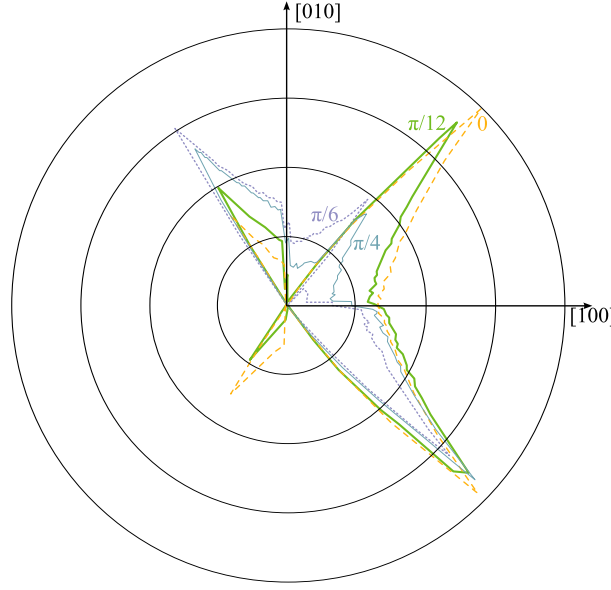


FIG. 2.61 – Évolution angulaire du champ de décalage d'après les simulations, pour différentes directions des moments piégés. En tirets longs (jaune), 0 ; en trait plein épais (vert),  $\pi/12$  ; en pointillés fins (violet),  $\pi/6$  ; en trait fin (bleu),  $\pi/4$ .

situent sur des défauts présents dans le volume de la couche [36], d'autres à l'interface ([40, 67]) ou encore sur des dislocations dans le réseau antiferromagnétique à l'interface entre le ferromagnétique et l'antiferromagnétique [164].

La compétition entre anisotropies conduit à des asymétries visibles sur les cycles d'hystérésis. La présence de ces asymétries a des conséquences sur les valeurs de champ pour lesquelles le passage par l'aimantation nulle se produit. Ainsi, l'approche par l'étude du champ coercitif ou d'échange est réductrice, puisque elle réduit l'ensemble de l'information contenue dans un cycle d'hystérésis à un seul ou deux nombres réels. Cependant, cette approche a l'avantage de pouvoir être facilement comparée à l'expérience. Nous nous proposons d'étudier les différents cas que nous avons rencontré dans l'expérience.

Dans le cas de la simulation du système comportant des moments piégés dans la direction 0 ([100]), le maximum de décalage de cycle n'est pas situé dans la direction des moments piégés, mais dans des lobes situés de part et d'autre de cette direction, à plus de 1 rad d'écart (figure 2.61). Cela correspond à la situation observée dans l'expérience (figure 2.34), à la différence que l'écart entre les deux lobes est bien plus éloigné dans la simulation qu'il ne l'est dans les mesures. De la même façon, dans le cas de la simulation comportant des moments piégés dans la direction  $\pi/4$  ([110]), la simulation montre la présence d'un lobe selon la direction des moments piégés accompagné de deux lobes situés de part et d'autre et de plus grande amplitude. La position des ces lobes latéraux est, de la même façon que dans le cas précédent, plus éloigné dans la simulation qu'elle l'est dans les mesures.

D'autre part, l'observation des résultats obtenus pour des moments piégés dans les directions  $\pi/4$ ,  $\pi/6$ ,  $\pi/12$  et 0 montre que, dans la simulation, les positions des maxima de décalage de cycle varient peu (figure 2.61). Ces positions sont intermédiaires entre les axes d'anisotropie des deux variants antiferromagnétiques, peu éloignées des directions de facile aimantation du fer (axes de type [110] du substrat). En revanche, ce sont les proportions relatives des

différents lobes qui varient continuellement lors du changement d'angle des moments piégés. Sur ce point, l'expérience diffère des résultats du modèle. Les mesures expérimentales montraient en effet une variation de la position des maxima selon une plus grande amplitude. Cependant, les valeurs de champ coercitif pour une mesure effectuée selon les axes de facile aimantation du fer sont surévaluées par rapport à la réalité, en raison de l'hypothèse du retournement cohérent. S'il était possible de corriger cet effet, l'effet de rotation de la position du maximum apparaîtrait de façon plus claire.

Par ailleurs, les variations des champ coercitifs et d'échange obtenus par simulation semblent plus brutales que dans les mesures expérimentales. Cela se comprend du fait que la simulation est faite dans l'hypothèse d'un grain unique. Dans les échantillons macroscopiques, les aimantations de plusieurs grains peuvent se renverser pour des valeurs légèrement différentes. Une façon de tenir compte de cet effet serait de réaliser un certain nombre de simulations en dispersant les paramètres autour d'une valeur moyenne, puis de calculer la réponse moyenne. Cela aurait pour effet de lisser les courbes et l'effet serait notamment visible aux positions de plus fortes variations.

Ces résultats de simulation numérique montrent que ce sont les propriétés intrinsèques de la couche de ferromagnétique qui pilotent la réponse en échange. L'introduction de termes de moments piégés est essentielle pour obtenir un décalage d'échange ; cependant la position des maxima est gouvernée par la compétition entre toutes les anisotropies en présence, parmi lesquelles figure l'anisotropie induite par le champ de décalage.

### 2.3.5 Autres énergies pouvant être considérées

Dans le travail précédent, nous avons négligé certaines énergies que nous pourrions prendre en compte. Il s'agit des énergies correspondant aux termes suivants :

- Couplage entre les moments antiferromagnétiques et le champ extérieur. Négliger cette énergie est une hypothèse habituelle dans le cas des antiferromagnétiques, valable pour les champs aux ordres de grandeur habituellement rencontrés au laboratoire. Un résultat expérimental montre un effet sur l'antiferromagnétique pour des champs de 55 T [4].
- Couplage entre les moments de surface de l'antiferromagnétique et les moments piégés. En effet, de même que ces moments piégés se couplent avec le ferromagnétique, ils doivent également se coupler avec les moments de surface de l'antiferromagnétique. Ce terme s'exprime par une énergie  $-\vec{h}\vec{M}^{AF}$  pour chaque variant.
- Effet d'épaisseur de l'antiferromagnétique. La colonne antiferromagnétique ne tourne pas nécessairement en bloc, car les moments sont couplés de proche en proche et que le couple sur l'antiferromagnétique est appliqué seulement sur le plan d'interface. Ainsi, il devrait exister un couple de rappel entre les moments antiferromagnétiques de surface et la direction des moments dans l'épaisseur de l'antiferromagnétique. L'énergie associée à ce terme s'exprime sous la forme  $-K(\vec{M}^{AF}\vec{e}_i)$  pour un variant orienté selon la direction  $\vec{e}_i$ . Nous avons étudié l'effet de l'introduction de ce terme.

L'introduction d'un terme de rappel angulaire introduit à une contrainte supplémentaire dans le système entre les deux variants, tendant à fixer plus rigidement leurs orientations relatives. L'introduction d'un tel terme conduit à des cycles de forme légèrement différente (figure 2.62). L'introduction de ce terme n'a pas permis d'améliorer significativement l'adéquation avec les mesures, alors que les seuls termes déjà introduits permettaient de reproduire les comportements observés. Il est d'autre part difficile de déterminer si un terme explicite de couplage existe entre deux variants. La structure magnétique à l'interface entre deux va-



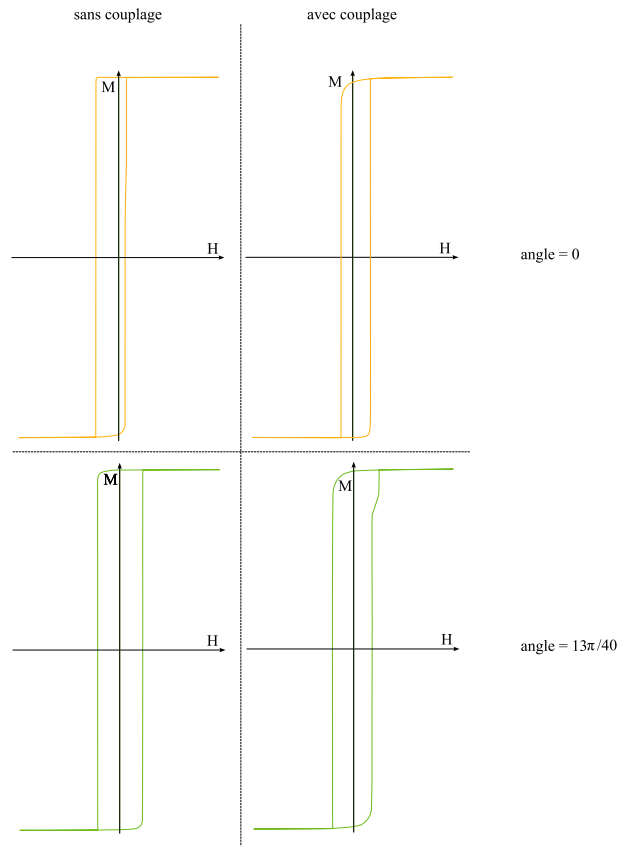


FIG. 2.62 – Cycles d’hystérésis obtenus après introduction d’un couplage entre les moments de l’antiferromagnétique et du ferromagnétique. Sur cet exemple, la direction des moments compensés est choisie selon l’angle 0 (direction [100]) et  $13\pi/40$ .

riants ne permet pas nécessairement l’existence d’un tel couplage. Enfin, les variants sont ici de petite taille par rapport à la largeur d’une paroi au sein du ferromagnétique. Le couplage entre chacun des deux variants et le ferromagnétique conduit donc, indirectement, à un couplage entre les deux variants. Nous n’avons ainsi pas jugé utile d’introduire un terme supplémentaire, dont l’amplitude est par ailleurs difficile à évaluer.

L’introduction d’un terme de paroi partielle dans le fer pourrait aussi être envisagé. L’observation d’une couche de Fe couplée [13] de 11 nm a déjà révélé la présence d’une paroi partielle pouvant atteindre  $\pi/3$  d’amplitude.

Au final, le modèle nous a permis de reproduire avec succès des propriétés importantes des mesures effectuées. Notamment, ce modèle permet d’expliquer l’évolution angulaire de propriétés telles que le décalage du cycle. Sa pertinence particulière est de prendre en compte un nombre limité d’énergies pour rendre compte de ces propriétés. Il est cependant simplifié pour plusieurs raisons :

- le mode de retournement choisi, celui du retournement cohérent, dont nous avons vu (paragraphe 2.2.4) dans quelle mesure il s’appliquait à nos échantillons. Nous avons déjà expliqué que ce choix entraînait une difficulté particulière à simuler les cycles près des

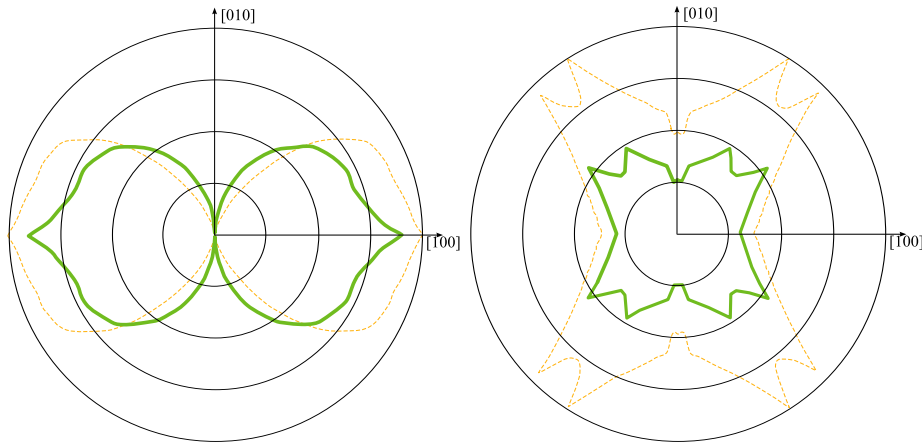


FIG. 2.63 – Évolution angulaire du champ coercitif dans différentes situations d'anisotropie. À gauche, résultat obtenu avec un seul variant. Lobe plus petit (trait épais, vert) : sans anisotropie ; lobe plus grand (trait tireté, jaune) : avec anisotropie d'ordre 4 dans le ferromagnétique. À droite, avec les deux variants (même remarque).

directions de facile aimantation du fer, mais que cela n'était pas un défaut majeur ;

- le retournement est supposé planaire. Cette hypothèse a été discutée dans la littérature. Certains [42] ont fait valoir que les modèles de retournement purement planaires n'étaient pas suffisants pour décrire les systèmes couplés. Le recours à un retournement tridimensionnel complique cependant grandement les calculs ;

L'introduction du terme de couplage entre les moments piégés et les moments antiferromagnétiques donne des cycles de taille légèrement modifiée, mais nécessite, pour obtenir des cycles de forme attendue, à renforcer l'anisotropie de l'antiferromagnétique, donnant un rapport  $(J/e)/K^{AF} \approx 1$ . Une solution réside peut-être dans cette voie.

### 2.3.6 Anisotropie induite

Le système étudié et le modèle proposé ont la propriété remarquable d'induire une anisotropie dans le ferromagnétique. Cela s'est vu à travers l'étude angulaire réalisée plus haut. Dans le cas de la modélisation, cela peut être mis en évidence en étudiant le système où le ferromagnétique ne présente pas d'anisotropie intrinsèque. Cela revient, dans les équations présentées au paragraphe 2.3.1, à poser  $K_4^F = K_2^F = 0$  de façon à annuler les termes d'anisotropie du ferromagnétique. Malgré cela, l'évolution angulaire simulée pour le ferromagnétique continue de montrer deux termes d'ordre 2 (figure 2.63). Ce terme d'anisotropie se comprend aisément puisque nous étudions un système bivalent, qui se caractérise par la présence de deux anisotropies d'ordre 2 d'axes principaux perpendiculaires entre eux.

Si l'on tient compte des deux variants dans le calcul, le champ coercitif du ferromagnétique augmente sensiblement. L'anisotropie induite par l'antiferromagnétique s'ajoute ainsi à celle du ferromagnétique.

### 2.3.7 Cas du permalloy

Là où l'analyse de l'anisotropie induite prend un intérêt particulier est l'étude du cas du permalloy. En effet, l'absence d'anisotropie intrinsèque au permalloy fait que la seule

anisotropie éventuellement observée doit être induite par l'antiferromagnétique. Le modèle proposé permet de rendre compte de l'évolution angulaire du champ coercitif, en utilisant des paramètres légèrement différents de ceux utilisés dans le cas du fer. D'une part, l'aimantation à saturation du permalloy est, à température ambiante, près de deux fois moindre de celle du fer, et d'autre part, l'obtention d'une évolution angulaire « carrée » (figure 2.64) nécessite d'utiliser un coefficient de couplage bien plus faible que dans le cas du fer :  $J/M^F = 5$  mT pour le cas du permalloy au lieu de  $J/M^F = 20$  mT dans le cas du fer. L'aimantation à saturation étant elle-même deux fois plus faible :  $J_{\text{Fe}}/J_{\text{NiFe}} \simeq 8$ . Pour interpréter ce coefficient de couplage plus faible, nous pouvons avoir recours à plusieurs arguments.

### Arguments basés sur la structure

D'une part, un point incontournable est la différence de structure entre fer et permalloy. En effet, le fer épitaxié sur MnPt adopte une structure cubique centrée, tournée de  $\pi/4$  par rapport au plan de la couche comme représenté sur la figure 2.19. Compte tenu de cette rotation le paramètre de maille effectif  $a_e = \sqrt{2}a$ . Si on utilise la paramètre de maille du composé massif,  $a \simeq 0,286\,64$  nm [165], cela donne  $a_e \simeq 0,405\,4$  nm. Le désaccord de maille entre le paramètre en volume du fer et la maille de MnPt, sur laquelle la couche de fer est déposée, est ainsi de 3,9 %.

En revanche, la structure FeNi est de type cubique à faces centrées. Son paramètre de maille en volume est de 0,361 4 nm, par interpolation à partir des données de la réf. [166] et des tables de conversion de [167]. Le désaccord de maille entre la valeur en volume du permalloy et la maille sur laquelle il s'épitaxie est ainsi de 7,6 %. Ce plus grand désaccord pourrait être à l'origine de défauts dans la couche ferromagnétique, près de l'interface. La structure de l'interface pourrait ainsi être perturbée, conduisant à un couplage moindre entre la couche ferromagnétique et la couche antiferromagnétique. Une mesure du paramètre de maille de NiFe dans le système épitaxié NiFe/Pt donne la valeur de 0,352 nm. Cette valeur dans la couche mince, plus faible que la valeur prévue en volume, pourrait s'expliquer par un écart sur la composition, c'est-à-dire un taux trop élevé de nickel dans l'échantillon. Quoi qu'il en soit, le désaccord de paramètre de maille entre FeNi et la couche tampon de Pt atteint ainsi 10 % et une valeur aussi grande doit nécessairement conduire à un taux de défauts d'interface important.

Notons que d'autres auteurs ont étudié des couches Fe/MnF<sub>2</sub> où Fe est polycristallin et MnF<sub>2</sub> bicristallin ([59, 139]). Le caractère polycristallin de la couche ferromagnétique n'a pas empêché qu'apparaisse les traits caractéristiques des interactions entre un ferromagnétique et un bicristal. Dans ces conditions, comment expliquer qu'une interface même fortement perturbée puisse conduire à une absence de couplage d'échange ?

Une autre possibilité est que, pour des raisons de mobilité atomique ou pour accommoder la différence de paramètre de maille, la couche d'interface ait une composition chimique différente. Une telle couche pourrait avoir pour effet de découpler les deux couches MnPt et FeNi.

La possibilité d'une interdiffusion à l'interface, conduisant à un mélange entre les espèces chimiques, semble exclue : les dépôts étant réalisés à température ambiante, la probabilité de migration d'atomes entre plans est faible.

### Arguments basés sur les propriétés magnétiques

Au final, les arguments basés sur la structure ne sont pas satisfaisants pour expliquer les résultats expérimentaux. En effet, nous avons vu au paragraphe 2.2.3 qu'un champ de décalage peut être produit dans une bicouche FeNi/MnPt pour un champ de recuit de [100] mais pas dans la direction [110]. Compte-tenu du caractère inattendu de ce résultat, un soin particulier a été apporté à vérifier la reproductibilité de ces expériences. Il nous faut alors recourir à des arguments basés sur les propriétés magnétiques.

Dans le cas du permalloy, la constante de couplage est du même ordre de grandeur et un peu plus importante que dans le cas du fer. On peut donc supposer qu'intrinsèquement, l'alignement du ferromagnétique est aussi bon dans le cas du permalloy que dans le cas du fer.

Cependant, la température de Curie du permalloy est plus basse que celle du fer (869 K au lieu de 1 043 K). Lors d'un recuit sous champ à 570 K, le rapport des aimantations à saturation entre le permalloy et le fer devient encore un peu plus faible, soit 0,42 à cette température [168].

D'autre part, le couplage avec la couche antiferromagnétique a été trouvé, dans les simulations, bien plus faible dans le cas du permalloy que dans le cas du fer. Il est alors possible d'expliquer l'absence de décalage d'échange dans le cas des expériences réalisées avec un champ appliqué lors du recuit orienté dans la direction [110]. En effet, dans le cas du recuit avec un champ appliqué dans la direction [100], la création de moments piégés dans le volume est possible car l'aimantation du permalloy est parallèle à cette direction, et qu'au moins un des variants présente une anisotropie qui favorise une orientation parallèle à celle du permalloy. Pour la direction de champ de recuit [110], la direction de l'aimantation du permalloy n'est jamais parallèle à la direction d'anisotropie des variants. L'aimantation à saturation du permalloy étant presque deux fois plus faible que celle du fer, il est possible que le couplage avec la couche de permalloy ne suffise pas à orienter parallèlement à sa direction les moments portés par les cristallites. La création de moments piégés dans une direction donnée n'est alors pas possible. La modification des propriétés du champ coercitif est cependant compatible avec l'absence de champ de décalage. Des simulations effectuées par d'autres auteurs montrent qu'un antiferromagnétique compensé FeMn peut induire une anisotropie d'ordre 4 dans une couche de permalloy, mais que certaines conditions liées à l'interface sont requises en supplément pour obtenir en outre un décalage d'échange [47]. Pour tester cette hypothèse, il serait possible de réaliser un recuit sous champ en présence d'un champ plus élevé que les 0,35 T utilisés (la procédure expérimentale est expliquée à l'annexe A.4), permettant un meilleur alignement de la couche ferromagnétique.

L'absence de décalage obtenue pour une direction spécifique de FeNi/MnPt est intrigante compte-tenu des résultats de la réf. [79] où les auteurs ont étudié ces dépôts déposés sur plusieurs types de substrat et pour plusieurs compositions. Un champ de décalage a ainsi été mesuré dans le cas de couches de type d'empilement et d'épaisseurs proches de celles utilisées ici : NiFe/MnPt/MgO. La procédure de dépôt différait par la température de dépôt de 670 K pour l'antiferromagnétique, 370 K pour le ferromagnétique, et par la présence d'un champ planaire lors du dépôt.

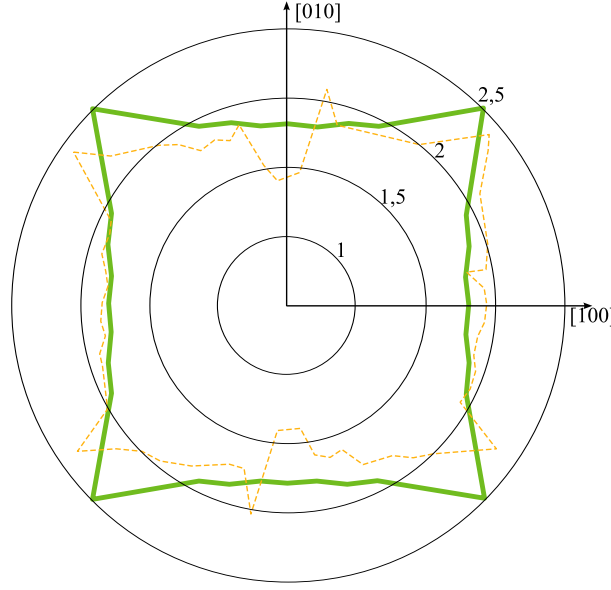


FIG. 2.64 – Évolution angulaire du champ coercitif obtenu par simulation (vert, trait épais) dans le cas du permalloy : pas d'anisotropie intrinsèque, aimantation plus faible. L'obtention de la forme adéquate nécessite l'utilisation d'une constante de couplage de  $J/M^F = 5$  mT au lieu de 20 mT. En surimposition (jaune, trait tireté), une évolution angulaire expérimentale. La courbe expérimentale est celle donnée sur la figure 2.39. Ces deux courbes ont été normalisées à la même amplitude maximale.

### 2.3.8 Conclusion

Le modèle présenté ici permet ainsi de reproduire les traits essentiels des mesures effectuées sur les échantillons FeNi/MnPt et Fe/MnPt. Ces résultats sont cohérents avec les mesures de la réf. [169]. En effet, ces auteurs ont montré, dans le cas de  $\text{FeF}_2$ , que les moments non compensés de l'antiferromagnétique tournent avec le ferromagnétique lorsqu'ils sont en surface, mais demeurent piégés à plus grande profondeur (au-delà de 3, 5 nm). D'autre part, une forte anisotropie des propriétés magnétiques avait déjà été observée dans la littérature pour le système NiO/Co. Une interprétation suivant le modèle de Stoner-Wohlfarth avait également été proposée. Notre approche se distingue cependant par le fait que les termes d'anisotropies dans l'évolution angulaire des propriétés est induite par une structure bivariée de l'antiferromagnétique [170]. Cependant, une limitation de notre modélisation est de supposer un retournement cohérent, et nous verrons plus loin dans quelles conditions cette hypothèse est vérifiée sur nos échantillons. Une autre limitation est de contraindre l'évolution des moments magnétiques dans un plan. Cette hypothèse est largement justifiée pour le ferromagnétique, dont l'aimantation est contrainte par l'anisotropie planaire et par le couplage avec le champ extérieur. Cependant, pour les moments non piégés de l'antiferromagnétique, des auteurs ont montré que l'hypothèse des moments planaires n'est pas satisfaisante [40].

# 3

## Système à anisotropie perpendiculaire

### 3.1 Introduction

Dans cette partie nous nous intéresserons au système MnPt à anisotropie magnétique perpendiculaire. En effet, ce système présente à la fois un intérêt fondamental et appliqué.

Du point de vue des applications, les matériaux les plus utilisés aujourd'hui pour l'enregistrement magnétique sont à aimantation planaire. Cependant, le stockage d'éléments d'information codées par une aimantation planaire longitudinale conduit à l'existence de domaines d'aimantation de même direction et de sens opposées, placés tête bêche (figure 3.1, schéma de gauche). Le champ démagnétisant créé par chacun des bits tend à déstabiliser les bits voisins d'aimantation opposée. À l'inverse, dans le cas d'un ferromagnétique présentant une anisotropie perpendiculaire à la couche, les aimantations issues de chaque bit se stabilisent mutuellement, contribuant à la pérennité de l'information.

De plus, la volonté de réaliser des supports d'enregistrement disposant d'une densité d'information toujours plus élevée conduit naturellement à diminuer la taille des grains magnétiques stockant l'information. Pour un matériau donné, un volume de grain plus faible réduit la durée de stabilité de l'information stockée. De façon à conserver une durée d'enregistrement longue malgré une taille de grains plus faible, des matériaux à forte anisotropie, tels que FePt, peuvent être utilisés. Cependant, le champ coercitif du grain d'information augmente avec l'anisotropie du matériau. Une telle augmentation pose des problèmes technologiques en ce qui concerne la conception de la tête d'écriture, qui doit être capable d'appliquer un champ supérieur au champ coercitif. Une solution possible à ce problème consiste à recourir à un support d'enregistrement à anisotropie perpendiculaire. En effet, dans ce cas, il est plus aisé d'appliquer un champ intense dans le matériau à l'aide d'une tête d'écriture dans cette configuration [171].

Du point de vue fondamental, les systèmes à anisotropie perpendiculaire présentent également des aspects d'intérêt majeur. Le couplage des spins dans cette configuration est peu connu. Ainsi, les études des effets liés à la configurations des spins à l'interface lors du couplage, l'effet de la rugosité d'interface, le mode de retournement, sont à renouveler pour ces systèmes. Plus particulièrement, il existe peu de travaux sur des systèmes antiferromagnétiques monocristallins. Pour ces raisons, nous avons exploré la voie de synthèse de l'alliage MnPt monovariant, présentant un axe  $c$  (001) perpendiculaire au plan de la couche mince et

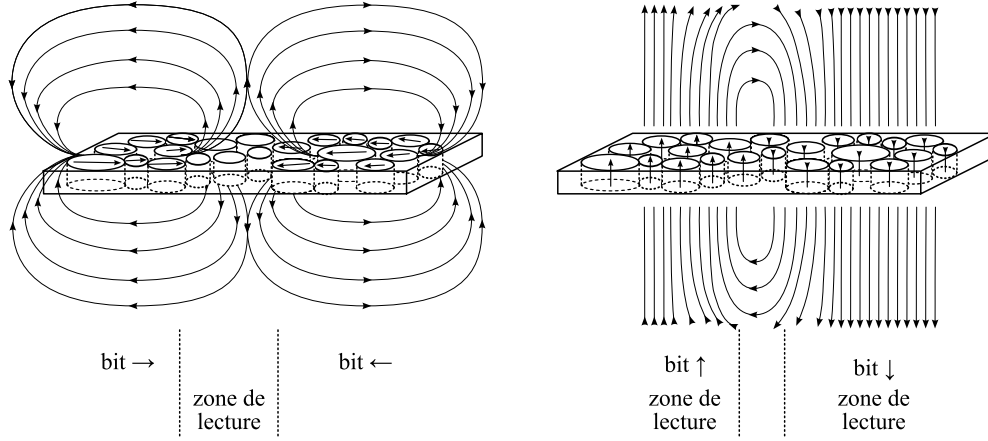


FIG. 3.1 – Illustration d’une piste magnétique d’un média à matériau ferromagnétique planaire (à gauche) et à ferromagnétique perpendiculaire (à droite). Le schéma met en évidence les lignes de champ créées par l’aimantation de la couche, à l’interface entre deux *bits* d’information opposées.

dont la surface porterait, dans l’hypothèse simple d’une prolongation de la configuration de volume, des spins magnétiquement compensés perpendiculaires au plan de la couche.

## 3.2 Croissance et structure

L’objectif de cette étude est d’obtenir des moments magnétiques perpendiculaires à la couche. Or, compte tenu de la structure magnétique de MnPt (voir chapitre 4.1), l’obtention de moments perpendiculaires à la couche suppose l’élaboration d’un cristal présentant un axe  $c$  perpendiculaire à la couche. Cependant, nous avons vu que le codépôt de l’alliage MnPt conduit à un axe  $c$  dans le plan de la couche, avec la présence des deux variants possibles, d’axes  $c$  suivant les directions  $[100]$  et  $[010]$  du substrat Pt (001). Un ordre chimique élevé est obtenu dès la température ambiante, et nous avons retrouvé des structures pour l’essentiel présentant ces mêmes caractéristiques pour des dépôts effectués à des températures plus élevées, jusqu’à 500 °C.

Pour favoriser la croissance de la structure  $L1_0$  de l’alliage selon l’axe perpendiculaire à la couche, nous nous proposons de déposer en alternance des couches atomiques pures Mn et Pt. Cette méthode de dépôt prédispose à la formation d’un ordre chimique avec l’axe  $c$  perpendiculaire au plan de la couche.

### 3.2.1 Élaboration

Nous allons élaborer des échantillons constitués d’alternances régulières de plans de manganèse et de platine, l’axe d’anisotropie étant perpendiculaire au plan de l’échantillon. Des études antérieures réalisées au sein du laboratoire ont montré l’efficacité de cette technique dans le cas des alliages FePd et FePt.

Dans le cas du FePd, un ordre chimique à longue distance uniaxe mais très faible ( $\simeq 0,1$ ) est obtenu lors d’une croissance couche par couche effectuée à température ambiante. L’ordre à courte distance est cependant significatif avec un net excès de paires Fe-Pd orientées

perpendiculairement au substrat, ce qui a été mis en évidence par des mesures EXAFS menées au LURE aussi bien qu'à l'ESRF [172]. Dans le cas de l'alliage FePt, les mêmes conditions de dépôt conduisent à un ordre chimique à longue distance plus élevé ( $0,4 \lesssim S \lesssim 0,5$ ). Il est tentant d'attribuer ce dernier résultat à une moindre interdiffusion entre plans atomiques lors du dépôt (la mobilité du platine étant moindre que celle du palladium).

Les couches à anisotropie perpendiculaire sont réalisées dans la même enceinte et dans des conditions identiques aux dépôts précédents. Les flux atomiques sont ajustés de telle sorte que le temps de remplissage d'une monocouche atomique soit de 3,8 s. Chacun des évaporateurs est équipé d'un masque mû pneumatiquement, permettant de couper les flux vus par l'échantillon. Ces caches sont activés alternativement de façon à laisser le flux atteindre l'échantillon durant la durée voulue. Un temps d'attente de 1 s est ajouté entre les ouvertures successives des caches. L'insertion de ce temps supplémentaire a un effet favorable sur la qualité de la croissance, annulant ou réduisant considérablement l'effet de dédoublement de pics de surstructure qui était observé dans le cas de FePd (comparer les figures 3.9 et 3.10). Nous choisissons d'élaborer des dépôts de MnPt composés de 78 couches de Mn alternées avec 78 couches de Pt. Cela conduit à une épaisseur de couche très proche de celle des couches obtenues précédemment par codépôt (30 nm). Dans le cas où la couche de MnPt est couplée avec une couche de ferromagnétique, la couche d'interface est choisie comme étant de manganèse, puisque le manganèse porte un moment magnétique nettement plus important que celui porté par le platine.

### 3.2.2 Effet de la température du substrat

Des dépôts ont été réalisés à différentes températures de substrat, entre la température ambiante et 450 °C. Les propriétés magnétiques comme structurales ont été étudiées en fonction de cette température.

#### Suivi de la croissance

La croissance a été suivie *in-situ* par diffraction d'électrons en incidence rasante, selon le même azimut que sur la figure 2.3. La figure 3.2 montre que, pour le dépôt effectué à température ambiante, des variants dans le plan existent, alors que la présence de variant à axe *c* perpendiculaire à la couche ne peut être mise en évidence. Pour le dépôt effectué à 350 °C, la présence de variants dans le plan ne peut être mise en évidence. La rugosité du dépôt est plus faible, ce que montre la présence de tiges de diffraction au lieu de taches. Ces tiges cependant se superposent aux positions des taches de diffraction correspondant à la présence d'ordre perpendiculaire à la couche. Ainsi, cela ne permet pas l'observation de l'ordre éventuellement présent. C'est donc à l'aide de mesures réalisées par des techniques différentes, comme la microscopie électronique et la diffraction des rayons X, dont les résultats seront présentés plus loin, que nous caractériserons l'ordre chimique présent dans ces échantillons.

#### Paramètres de maille

Les mesures montrent que le paramètre de maille mesuré dans la direction perpendiculaire à la couche décroît avec la température de dépôt (table 3.1). Cela signifie que lorsque la température de dépôt augmente, le rapport  $c/a$  diminue, et la maille se rapproche de sa structure d'équilibre. Le paramètre de maille dans le plan a été mesuré par diffraction de neutrons (figure 4.4).



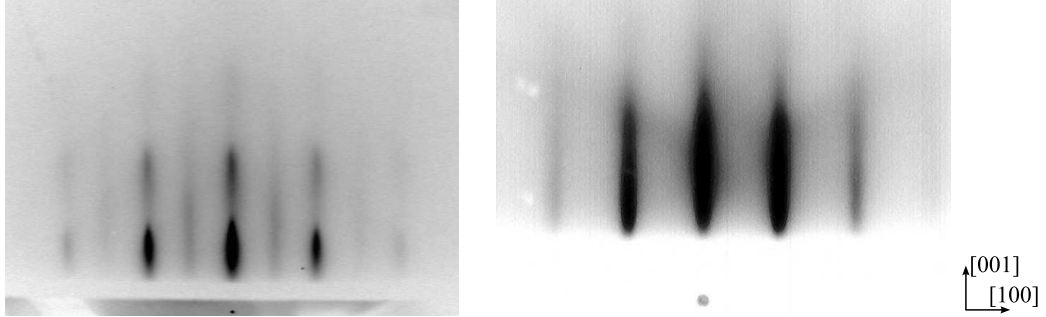


FIG. 3.2 – Observation en diffraction d'électrons en incidence rasante de la croissance de MnPt déposé en couche par couche, pour deux températures de dépôt. À gauche, observation réalisée sur un échantillon dont la couche d'alliage a été déposée à température ambiante. À droite, observation de l'échantillon déposé à 350 °C. Au moment de l'observation, les échantillons ont pour composition MnPt (76 bicouches)/Pt (45 nm).

T (°C)	$c$ (nm)	incertitude
30	0,384 7	$\pm 0,6 \times 10^{-12}$ m
250	0,375 7	$\pm 1,8 \times 10^{-12}$ m
350	0,374 6	$\pm 0,1 \times 10^{-12}$ m
450	0,373 2	$\pm 0,5 \times 10^{-12}$ m

TAB. 3.1 – Paramètre de maille en fonction de la température de dépôt, dans le cas d'échantillons MnPt déposés selon la technique des couches alternées. L'incertitude indiquée correspond à l'écart-type entre plusieurs mesures du même échantillon pour des pics de diffraction. On rappelle la valeur du paramètre  $c$  dans le cas de l'alliage massif (tableau 2.4) : 0,366 47 nm.

pic	température (°C)			
	30	250	350	450
001	51	100	88	121
002	68	76	80	82
003	82	177	261	290
004	141	-	354	339

TAB. 3.2 – Évolution de la largeur des domaines cohérents dans la direction  $q_{//}$  de l'espace réciproque, mesurée par  $1/l_{1/2}^\omega$  et exprimée en unités de  $10^{-12}$  m.  $l_{1/2}^\omega$  est la largeur à mi-hauteur du pic mesuré par une rotation selon l'axe  $\omega$ , dans les conventions de la figure A.3. La largeur du pic 001 dans le cas 350 °C est la seule qui ne pas s'insère pas dans la progression remarquée dans le cas des autres mesures et d'autres températures. Cependant, les volumes intégrés calculés à partir de ces pics donnent un ordre chimique qui s'insère dans une progression continue, ainsi qu'il sera vu à la table 3.3.

L'évolution du paramètre de maille perpendiculaire au plan avec la température du substrat lors du dépôt montre que la réalisation d'un dépôt à une température légèrement supérieure à la température ambiante conduit déjà à une diminution notable du rapport  $c/a$ . Pour des températures encore plus élevées, l'évolution avec la température est moins marquée, mais monotone. Un phénomène thermiquement activé, probablement lié à la migration des atomes, intervient ainsi à une température à peine supérieure à l'ambiante. À l'inverse du paramètre de maille perpendiculaire à la couche, le paramètre de maille dans le plan ne varie pas, car cette distance est fixée par l'épitaxie sur la couche de platine.

Les largeurs de raies permettent de calculer une longueur de corrélation, les deux grandeurs étant inversement proportionnelles. La taille des domaines cohérents ainsi mesurés varie de la même façon que la taille des cristallites, si l'on suppose que les autres sources d'élargissement (contraintes dans le matériau et élargissements instrumentaux) sont constantes. Les mesures montrent une évolution de la longueur de corrélation allant du simple au double entre la température ambiante et la plus haute température étudiée (table 3.2 et figure 3.3). Nous en concluons qu'une plus haute température favorise la croissance de domaines de taille plus importante. Remarquons que la largeur du pic noté 002 évolue très peu avec la température. Le pic 002 du MnPt n'est en effet pas séparé du pic 002 du platine. L'intensité de ce dernier étant très grande, il masque l'évolution du pic 002 du MnPt.

### 3.2.3 Croissance et ordre chimique

L'ordre chimique, dont nous avons déjà souligné l'importance dans l'étude des propriétés de l'alliage MnPt, sera étudié ici à l'aide de techniques de rayons x et de microscopie électronique en transmission. Comme pour les échantillons à anisotropie planaire, nous nous attacherons à quantifier cet ordre chimique et à caractériser la répartition des zones ordonnées au sein de l'échantillon.

#### Cristallites

À l'aide de la microscopie électronique en transmission, il nous est possible de caractériser l'orientation de l'axe de croissance des cristallites et de donner leur répartition dans la couche. Nous nous sommes plus particulièrement concentrés sur l'échantillon déposé à plus

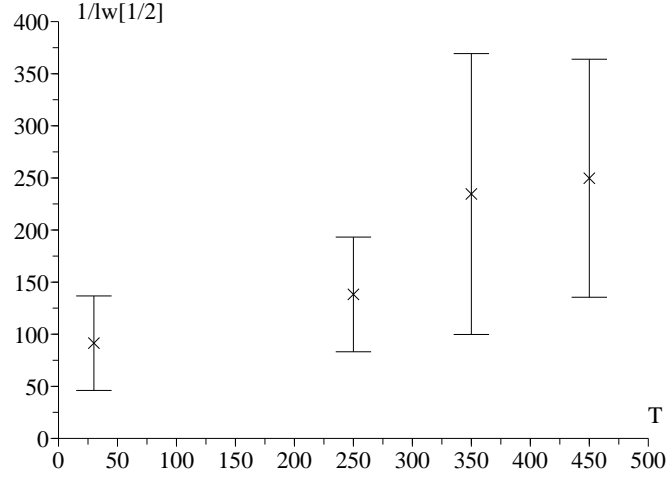


FIG. 3.3 – Évolution de la largeur des pics de l’alliage MnPt (dans l’espace réciproque) obtenus pour différentes températures de dépôt, en excluant le pic noté 002 (convolué avec le platine). L’axe des abscisses donne la température du substrat lors du dépôt (°C), l’axe des ordonnées donne  $1/l_{1/2}^w$  en unités de  $10^{-12}$  m, tel que calculé à la table 3.2. La demi-hauteur de la barre correspond à l’écart-type des valeurs utilisées pour le calcul de la valeur moyenne. Les mesures ont été faites sur des échantillons Pt (3 nm)/MnPt (78 bicouches)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100).

haute température, dont nous supposons en raison des résultats précédents qu’il s’agit des échantillons présentant le plus fort degré d’ordre chimique.

Les images en diffraction électronique d’une coupe transverse (figure 3.4) montrent l’épitaixie réalisée. Les taches sont intenses et nettement définies. Nous pouvons observer sur le cliché de diffraction les taches de surstructure 001. Il ne montre aucune tache de surstructure correspondant aux variants planaires. La répartition du variant à axe  $c$  perpendiculaire à la couche a été obtenue par champ sombre sur la tache de surstructure 001 (figure 3.5). Cette répartition montre des grains ordonnés qui croissent perpendiculairement à la surface de la couche et qui remplissent la plus grande partie du volume déposé. L’observation en champ sombre des pics 001 et 110, correspondant aux variants d’axe planaire, ne donne aucun signal, montrant l’absence de variants d’axe  $c$  planaire. L’observation en haute résolution du même échantillon (figure 3.6) confirme la présence de la période double caractéristique de l’ordre chimique.

### 3.2.4 Quantification de l’ordre chimique

Les observations de microscopie électronique nous ont permis de mettre en évidence, dans le cas des échantillons déposés couche par couche à température élevée, un ordre chimique caractérisé par un axe  $c$  perpendiculaire à la surface de la couche. Cependant, comme signalé plus haut, l’étude quantitative de l’ordre chimique est réalisée plus aisément par une technique de diffraction des rayons X, que nous avons à nouveau retenue.

La mesure du paramètre d’ordre à l’aide de la diffraction des rayons X se fait de la même

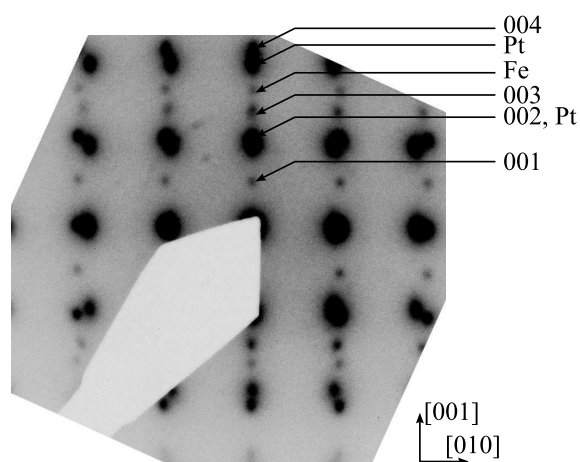


FIG. 3.4 – Image en diffraction électronique d'un échantillon Pt (3 nm)/Fe (10 nm)MnPt (78 bicouches)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) déposé par la technique de couche par couche, à 350 °C, montrant un ordre chimique préférentiel dans la direction hors plan. La numérotation indiquée fait référence aux pics du MnPt, par rapport au substrat de platine. Les autres mentions portées identifient la couche à l'origine du pic considéré. Ce cliché de diffraction a été réalisé en aire sélectionnée sur une coupe transverse de l'échantillon. Le MgO ne contribue pas au signal de diffraction sur l'aire choisie.

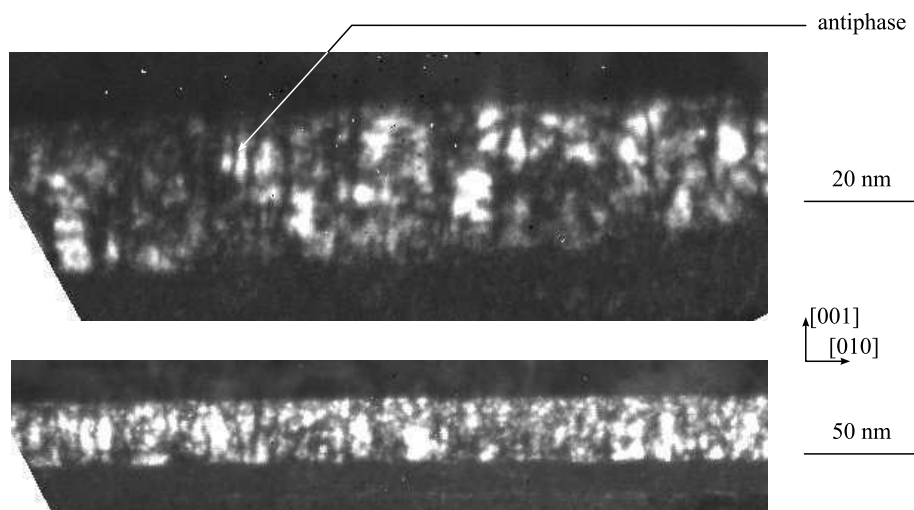


FIG. 3.5 – Observation en microscopie électronique en transmission d'un échantillon de MnPt déposé couche par couche. L'observation est réalisée en champ sombre sur la tache 001 (dans la notation de la figure 3.4), c'est-à-dire que les zones claires montrent la répartition du variant à axe  $c$  perpendiculaire à la couche.

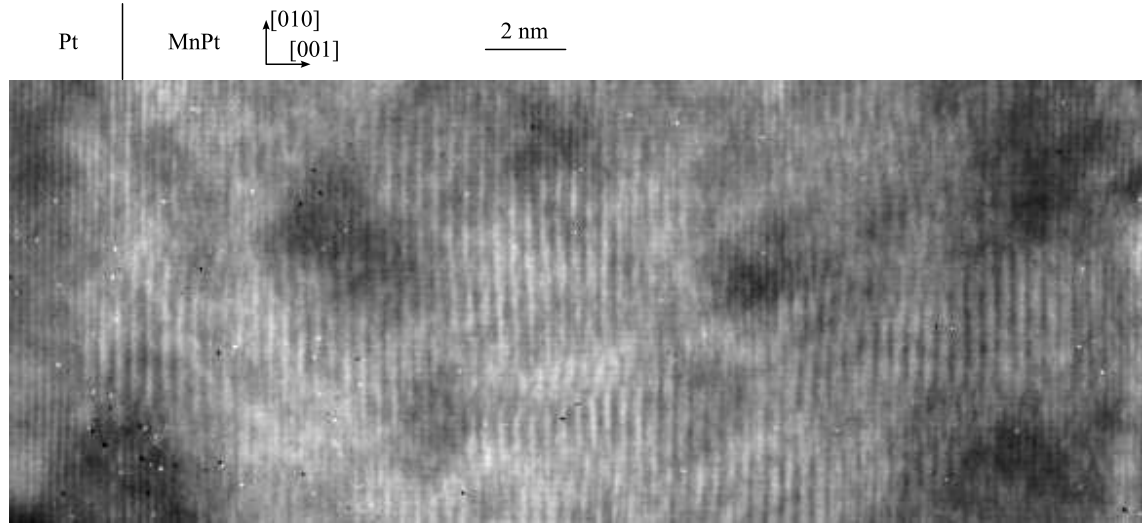


FIG. 3.6 – Image en microscopie électronique en transmission et en haute résolution d'un échantillon de MnPt déposée en couche par couche sur un substrat de platine. L'existence d'une orientation préférentielle pour le variant à axe  $c$  perpendiculaire au plan de la couche est nettement visible. Elle correspond à la période double observée dans la direction  $[001]$ .

T (°C)	$S_{\perp}$	$S_{//}$
30	0,04	0,13
250	0,61	-
350	0,82	0,15
450	0,97	négligeable

TAB. 3.3 – Évolution du paramètre d'ordre à longue distance avec la température du substrat lors du dépôt.

façon qu'il a été fait précédemment pour les dépôts à anisotropie planaire, les spécificités du cas perpendiculaire sont détaillées à l'annexe B.4.

L'observation des courbes de diffraction des rayons x (figure 3.7) pour des échantillons dont la couche d'alliage a été déposée pour différentes températures de substrat montre une augmentation de l'aire du pic 001 caractérisant l'ordre chimique et permet également d'illustrer l'évolution du paramètre de maille de l'alliage MnPt (mentionnée à la table 3.1).

Le calcul du paramètre d'ordre à longue distance en fonction de la température du substrat lors du dépôt montre une évolution monotone de l'ordre caractérisé par un axe  $c$  perpendiculaire à la couche (table 3.3). Cet ordre augmente avec la température du substrat lors du dépôt, très significativement dès la plus basse température étudiée. En revanche, jusqu'à une température assez élevée, le paramètre d'ordre associé aux variants planaires change peu, avant de décroître aux températures les plus élevées. Cette différence de comportement traduit vraisemblablement la difficulté à nucléer et à croître des variants planaires alors que le mode de dépôt favorise évidemment le variant perpendiculaire.

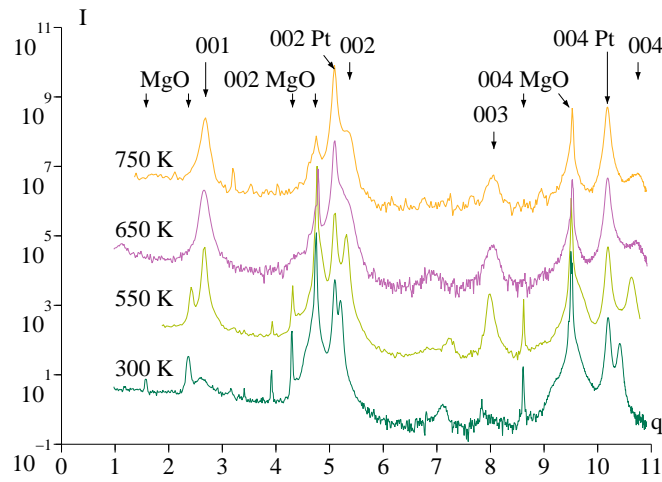


FIG. 3.7 – Mesures  $\theta - 2\theta$  faites sur des échantillons Pt (3 nm)/MnPt (78 bicouches)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100) déposés pour différentes températures de substrat. On note l'évolution du pic 001 d'ordre de MnPt, qui augmente en hauteur avec la température de dépôt. L'indexation indiquée par des nombres seuls correspond à MnPt. Les pics notés MgO, correspondent au substrat, pour les raies  $K_\alpha$  et  $K_\beta$  du Cobalt ainsi que les harmoniques de type  $\lambda/2$ . Les autres pics très fins présents sur les échantillons déposés à température ambiante sont liés au MgO. Les pics notés Pt correspondent à la couche tampon de platine. Le pic de faible intensité situé vers  $7 \text{ nm}^{-1}$  peut être lié à la couche de mouillage de chrome. Les axes des abscisses est en unités de l'espace réciproque  $q = \sin \theta / \lambda$  ( $\text{nm}^{-1}$ ). Les ordonnées sont en unité arbitraire d'intensité.

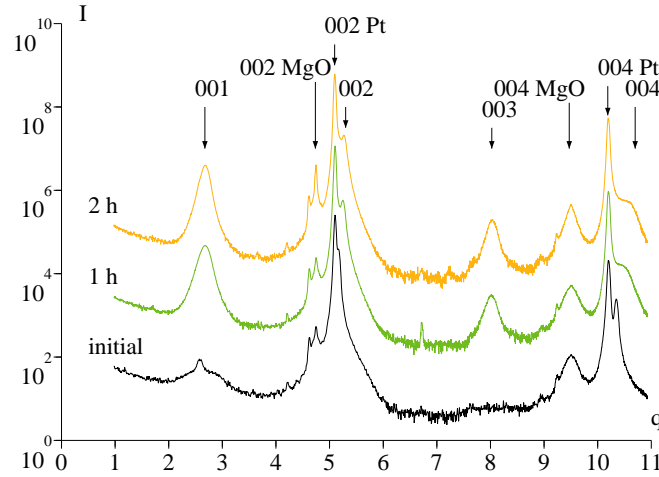


FIG. 3.8 – diffraction des rayons x sur un échantillon Pt (3 nm)/MnPt (78 bicouches)/Cr (3 nm)/MgO (100), le vecteur de diffusion étant perpendiculaire à la couche. L’abscisse est en unités de l’espace réciproque ( $\text{nm}^{-1}$ ), l’ordonnée donne l’intensité (en coups par seconde, échelle logarithmique, décalage arbitraire). Trois courbes sont affichées : l’état initial (après recuit à 300 °C pendant 30 min), le même échantillon après un recuit à 450 °C pendant 1 h, et après un recuit additionnel de 1 h à cette température.

T (°C)	paramètre d’ordre
300	$\simeq 0,11$
450	$\simeq 0,5$
450	$\simeq 0,55$

TAB. 3.4 – Paramètre d’ordre d’un échantillon MnPt couche par couche à température ambiante sur substrat platine, en fonction de l’étape du recuit.

### 3.3 Recuits

Dans cette section, nous étudions l’effet d’un recuit prolongé de l’alliage MnPt déposé couche par couche à température ambiante. En effet, dans la littérature, de nombreuses études (voir paragraphe 1.3) montrent la possibilité de contrôler l’ordre chimique par recuit. Un échantillon MnPt/Pt est ainsi préparé dans des conditions comparables aux échantillons précédents. Il est étudié à l’aide de mesures de diffraction des rayons x entre les étapes de recuit.

La mesure effectuée après l’étape initiale, un recuit effectué à 300 °C pendant 30 min, montre que les paramètres de maille ne sont pas affectés par ce recuit. Nous choisissons d’effectuer les deux recuits suivants à la température de 450 °C, suffisante pour obtenir une migration significative en volume dans le matériau.

La mise en ordre a lieu durant la première heure de recuit et aucune évolution significative, que ce soit pour les paramètres de maille, largeurs de pics ou volume intégré, ne survient après la deuxième heure de recuit (voir figure 3.8). Notons que le paramètre  $c$  diminue notablement,



passant de 0,384 nm à 0,372 nm après le premier recuit à 450 °C, parallèlement à l'augmentation du paramètre d'ordre chimique. Cette évolution de paramètre de maille est comparable à celle observée dans le cas du dépôt effectué couche par couche à haute température (table 3.1). Les pics correspondants à la mise en ordre avec un axe  $c$  dans la plan restent faibles, avec  $I_{002}/I_{102} \simeq 10^3$ .

Cette étude montre que le recuit à une température de 450 °C est une méthode envisageable pour augmenter le paramètre d'ordre correspondant à l'axe  $c$  perpendiculaire, sans pour autant faire apparaître significativement l'ordre correspondant à l'axe  $c$  dans le plan. Cependant, le paramètre d'ordre à longue distance après recuit est inférieur à celui obtenu par la méthode de dépôt couche par couche à température élevée.

### 3.4 Irradiation

Dans les parties précédentes de ce travail, nous avons cherché à ajuster l'ordre chimique des échantillons en nous plaçant dans des conditions de dépôt particulières. Ainsi, nous avons réalisé des dépôts couche atomique par couche atomique. L'irradiation par ions légers est une méthode qui pourrait permettre d'obtenir un effet similaire, pour une température de procédé plus basse que celles mises en jeu par les autres méthodes exposées. En effet, les lacunes atomiques créées dans le volume du matériau lors de l'irradiation ont pour effet d'accroître considérablement les processus de diffusion. Ici, nous nous intéresserons plus particulièrement à une irradiation par des ions légers  $\text{He}^+$ . Ce sont les chocs entre les ions  $\text{He}^+$  et les atomes de l'alliage qui peuvent provoquer le déplacement des atomes d'alliage et provoquer l'apparition de couples lacunes/atomes interstitiels [173]. La présence de lacunes dans un échantillon où préexiste un ordre local peut ensuite conduire à une mise en ordre vers la structure  $\text{L1}_0$  pour des températures modérées [174].

Les détails instrumentaux du dispositif d'irradiation sont fournis au paragraphe A.5. Nous effectuons ici des irradiations par des ions  $\text{He}^+$  d'énergie 10 kV, pour une dose de  $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ .

#### 3.4.1 Échantillon de FePd

Au sein du laboratoire, les recherches précédentes sur les effets de l'irradiation ont été menées sur des installations du Centre de spectrométrie nucléaire et de spectrométrie de masse (CSNSM), laboratoire du CNRS à Orsay. Nous disposons maintenant d'un outil d'irradiation couplé au bâti d'épitaxie. De façon à vérifier que l'irradiation par ions  $\text{He}^+$  est réalisée dans des conditions adéquates, un échantillon FePd/Pd a été observé en premier lieu. Les études antérieures ont en effet montré l'efficacité de l'irradiation dans le cas de ce type d'échantillons.

L'étude par diffraction des rayons x de l'échantillon avant irradiation (figure 3.9) montre que le pic 001, révélateur de l'ordre chimique, est présent, mais de faible intensité. Le paramètre d'ordre de l'échantillon avant irradiation est  $S \simeq 0,3$ . Le pic 001 est dédoublé : il est constitué de deux pics fins situés de part et d'autre de la position attendue. Le pic 002 ne présente pas cette particularité. Nous pouvons attribuer ce phénomène à la différence entre le paramètre de maille et la fréquence spatiale imposée par la procédure de dépôt couche par couche [172].

Une irradiation de l'échantillon pour une dose de  $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ , à une température de 250 °C est réalisée. Après irradiation, le paramètre de maille du FePd dans la direction perpendiculaire à la couche se rapproche légèrement de celui du platine. Cela peut traduire un

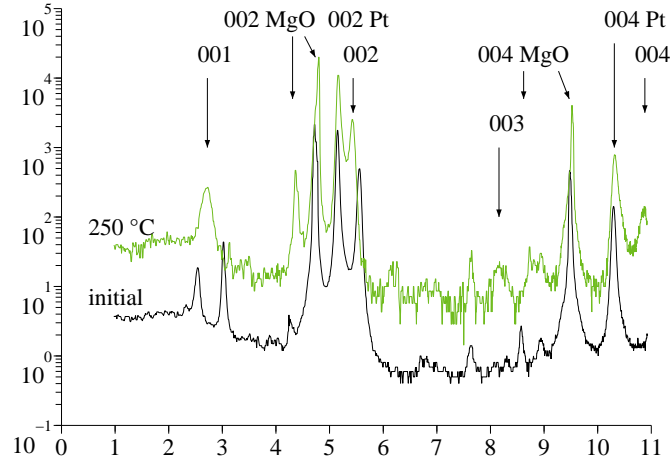


FIG. 3.9 – diffraction des rayons X sur un échantillon de FePd, le vecteur de diffusion étant perpendiculaire à la couche. L'abscisse est en unités de l'espace réciproque ( $\text{nm}^{-1}$ ), l'ordonnée donne l'intensité (en coups par seconde, échelle logarithmique, décalage arbitraire). Les pics [00l] du FePd sont indexés. Deux courbes sont dessinées : avant irradiation (en bas), après irradiation (en haut).

léger enrichissement en platine lié à l'interdiffusion entre la diffusion au sein du matériau induite à l'interface entre le l'alliage et le substrat. Le pic de surstructure 001 n'est plus séparé en deux composantes, et il est plus large qu'auparavant. Compte-tenu de son augmentation de volume, le paramètre d'ordre à longue distance atteint  $S \simeq 0,6$ .

### 3.4.2 Échantillon de MnPt

Un échantillon de MnPt/Pt couche par couche est préparé dans les conditions détaillées au paragraphe 3.2.1. L'irradiation est réalisée dans des conditions similaires à l'échantillon de FePd.

L'irradiation conduit à un résultat très différent du cas du FePd (figure 3.10). En effet, après irradiation, le pic 001 n'augmente pas sensiblement ni en largeur dans la direction  $q_{\perp}$  ni en intensité. En revanche, les pics de MnPt et du substrat Pt, qui sont séparés avant irradiation, se superposent après irradiation. Cela traduit, comme dans le cas du FePd, un rapprochement des paramètres de maille lié à une interdiffusion à l'interface. Cependant, à l'inverse du cas du FePd, la largeur des pics de diffraction dans la direction  $q_{\perp}$  augmente sensiblement (effet particulièrement visible sur le pic 004). La largeur plus grande des pics 004 de Pt et de MnPt montre que les paramètres de mailles de ces deux couches présentent une dispersion plus importante. On peut attribuer cette dispersion à une diffusion plus grande à l'interface entre les deux couches.

Les pics de diffraction correspondant à des variants planaires ont été étudiés. Avant comme après irradiation, leur intensité est très faible, de l'ordre du coup par seconde, donnant un rapport d'intensité  $I_{002}/I_{102} \simeq 10^4$ . Pour comparaison, dans le cas d'un échantillon codéposé à température ambiante, majoritairement ordonné avec l'axe  $c$  dans le plan, ce même rapport

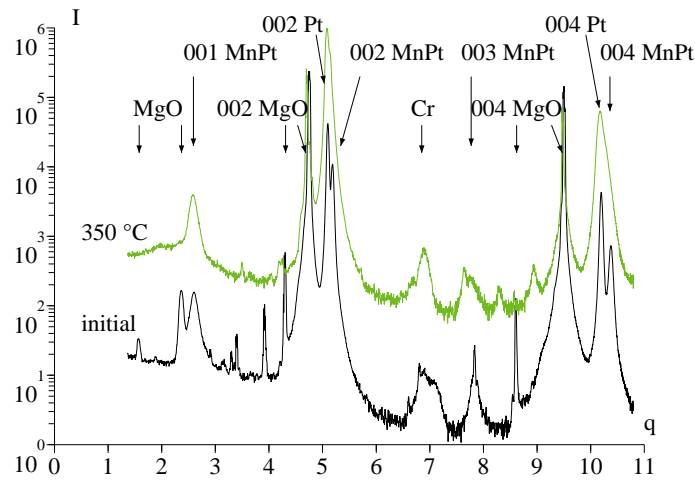


FIG. 3.10 – diffraction des rayons x sur un échantillon Pt (3 nm)/MnPt (78 bicouches)/Cr (3 nm)/MgO (100), le vecteur de diffusion étant perpendiculaire à la couche. Le pic situé vers  $7 \text{ nm}^{-1}$  est attribuable à la couche de chrome utilisée pour le mouillage. L'abscisse est en unités de l'espace réciproque ( $\text{nm}^{-1}$ ), l'ordonnée donne l'intensité (en coups par seconde, échelle logarithmique, décalage arbitraire). Deux courbes sont dessinées : avant irradiation (en bas), après une irradiation de dose  $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$  à  $300 \text{ °C}$  (en haut). La courbe effectuée sur l'échantillon montre de nombreux pics secondaires liés au substrat. En particulier, le pic noté MgO, situé à gauche du pic 001 MnPt ne doit pas être confondu avec le dédoublement observé dans le cas du FePd (figure 3.9).

est de l'ordre de  $I_{002}/I_{102} \simeq 30$ . La faiblesse de ces pics d'ordre correspondant à l'axe  $c$  dans le plan montre que cet ordre est négligeable dans l'échantillon non irradié comme irradié.

D'autre part, une phase  $L1_2$ , correspondant à la stœchiométrie  $MnPt_3$ , pourrait se former à l'interface en cas d'interdiffusion notable. Les paramètres de mailles de  $MnPt$  et  $MnPt_3$  étant proches et la structure  $L1_2$  conduisant, comme la structure  $L1_0$ , à des pics de surstructure en position 102, 103..., il n'est pas toujours aisé de distinguer les deux. Cependant, nous n'avons pas observé de pic significatif correspondant à l'axe  $c$  planaire de  $MnPt$ , qui serait caractéristique de l'alliage  $MnPt_3$ . L'interdiffusion est donc faible, ou n'a pas conduit à cette composition.

La quantification des pics de surstructure correspondant à l'ordre perpendiculaire à la couche montre que le paramètre d'ordre à longue distance n'augmente pas après irradiation dans l'alliage  $MnPt$ . Avant irradiation, ce paramètre vaut environ  $S \simeq 0,23$ . Après irradiation, sa quantification perd en précision, car l'ampleur de l'interdiffusion entre  $Pt$  et  $MnPt$  n'est pas connue, ce qui empêche de déterminer l'épaisseur effective de  $MnPt$  qui donne le signal de surstructure mesuré. Sous hypothèse que la diffusion est suffisamment faible et que nous pouvons donc conserver les mêmes facteurs de correction avant et après irradiation, le paramètre d'ordre après irradiation peut être évalué à  $S \simeq 0,15$ .

### 3.4.3 Conclusion

Nous avons ainsi étudié l'effet d'une irradiation d'une couche de  $MnPt$  par ions légers pour des doses comprises entre  $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  et  $10^{17} \text{ cm}^{-2}$  et pour des températures comprises entre la température ambiante et  $500^\circ\text{C}$ . Il semble que, dans le cas de l'irradiation d'une bicouche  $MnPt/Pt$ , la cinétique d'interdiffusion entre les couches de platine et d'alliage  $MnPt$  soit très rapide et conduise à un mélange de l'interface. Également, il peut être avancé que la nature de l'ordre chimique préexistant à l'étape d'irradiation est un paramètre essentiel pour le succès de la méthode. Dans le cas de l'alliage  $FePd$ , des mesures EXAFS (*Extended X-Ray Absorption Fine Structure*) avaient permis de caractériser l'ordre à courte distance préexistant. Des simulations numériques montraient que cet ordre à courte distance permet de sélectionner l'obtention prépondérante du variant à axe  $c$  perpendiculaire [174]. À l'opposé, si avant irradiation coexistent dans les échantillons de  $MnPt$  des régions ordonnées et d'autres chimiquement désordonnées, l'irradiation peut ne pas conduire à faire efficacement croître les grains ordonnés.

# 4

## Étude de la structure magnétique de MnPt

### 4.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous nous proposons d'étudier la structure magnétique des alliages MnPt élaborés en couches minces. Du point de vue fondamental, la connaissance de la structure magnétique est déterminante pour comprendre l'interaction d'échange. Du point de vue applicatif, la valeur de la température de Néel des couches antiferromagnétiques est également un des critères de choix de l'alliage. La structure magnétique de MnPt ayant déjà été caractérisée pour l'alliage massif, nous utiliserons ces résultats que nous chercherons à valider dans le cas des couches minces.

Très peu après leur découverte [175], les neutrons ont été proposés pour des expériences de diffraction [176, 177]. L'intérêt d'utiliser des neutrons pour ces expériences réside dans leur couplage avec le moment de spin électronique et nucléaire ainsi qu'avec le moment orbital. Cette propriété rend les faisceaux de neutrons à même de caractériser la structure magnétique de matériaux. En particulier, le recours à la diffraction de neutrons est un moyen de choix pour l'étude de l'état antiferromagnétique [178].

Les mesures de diffraction de neutrons de l'alliage MnPt publiées dans la littérature ont été faites sur des poudres. Nous nous proposons dans cette partie de vérifier les conclusions de ces mesures dans le cas de nos couches minces. En particulier, nous chercherons à conformer que la structure de MnPt est colinéaire, c'est-à-dire que les moments magnétiques portés par les atomes sont parallèles entre eux [94] et ne se distinguent que par leur orientation  $\uparrow$  ou  $\downarrow$ .

### 4.2 Dispositif instrumental

Les mesures ont été menées au laboratoire commun CEA-CNRS Léon Brillouin sur l'instrument à trois axes 4F2 [179]. Les neutrons à la sortie de cette ligne ont un vecteur d'onde compris entre  $10,5 \text{ nm}^{-1}$  et  $26,62 \text{ nm}^{-1}$  et ne sont pas polarisés. Au niveau de l'échantillon, le faisceau mesure  $4 \times 8 \text{ cm}^2$ . Le bruit de fond est de l'ordre de  $0,5 \text{ s}^{-1}$ . Bien que plus particulièrement dédié à l'étude de la diffusion inélastique, ce diffractomètre peut être utilisé avec profit pour l'étude en diffusion élastique que nous menons. Notamment, sa géométrie à trois axes permet d'étudier aisément la structure de monocristaux. Nous choisissons le vecteur

d'onde de  $26,62 \text{ nm}^{-1}$ , pour lequel le faisceau accessible sur ce dispositif est le plus intense :  $1,4 \times 10^7$  neutrons par seconde.

Le flux produit par le réacteur variant légèrement dans le temps, un détecteur arrêtant une faible partie du faisceau est placé sur la ligne, avant l'échantillon. Au début de chaque point de mesure, le compte de ce moniteur est ramené à zéro. La mesure s'achève lorsque le moniteur atteint un nombre de coups fixé à l'avance. Ainsi, la mesure est normalisée par rapport à l'intensité incidente.

Le diffractomètre est équipé d'un four permettant de chauffer l'échantillon entre la température ambiante et  $2\,100 \text{ K}$ . Le vide dans l'enceinte chauffée est réalisé par une pompe turbomoléculaire et la pression durant l'expérience est maintenue dans la gamme de  $10 \text{ mPa}$ . Par ailleurs, de façon à utiliser au mieux le flux de neutrons, les échantillons sont élaborés de la plus grande taille possible dans le bâti d'épitaixie. Leur taille est d'environ  $20 \times 16 \text{ mm}^2$ .

Dans la suite de l'exposé, nous choisissons une base de l'espace réciproque associée à l'échantillon. Cette base est choisie de façon à ce que les pics magnétiques et nucléaires de type 001 (aux permutations d'indices près) soient attendus à  $q = 1$  selon les axes  $h$  et  $l$ . Dans le cas des échantillons à anisotropie planaire, la base retenue correspond, dans l'espace direct, aux paramètres  $(a, b, c) = (0,39108, 0,39246, 0,39060) \text{ nm}$ . Dans le cas de l'échantillon à anisotropie perpendiculaire, la base retenue est  $(a, b, c) = (0,40493, 0,40493, 0,36610) \text{ nm}$  pour la température ambiante. La valeur du paramètre  $c$  est ajustée lorsque la température varie, pour tenir compte de la dilatation thermique et des modifications structurales de l'échantillon (qui seront discutées plus loin).

Pour un variant MnPt donné, les pics accessibles avec la longueur d'onde utilisée dans les expériences sont 100, 200, 110, 120, 220 et les pics observés par permutation deux à deux des indices ainsi que par changement de signes des indices. Pour chaque échantillon, un choix de pics étudiés est effectué qui permette d'avoir accès à des informations structurales et magnétiques (figure 4.1). Ce choix sera explicité pour chaque échantillon.

### 4.3 MnPt planaire

L'objectif de cette expérience<sup>1</sup> est de confirmer la structure magnétique dans le cas des échantillons de MnPt à anisotropie planaire.

L'observation des positions 001, 101 et 100 (figure 4.2) montre des pics compatibles avec la structure proposée, selon laquelle les moments magnétiques portés par les atomes sont parallèles à la direction  $c$ . Ainsi, le pic 001, purement magnétique est comme attendu intense car il superpose deux contributions et, dans la direction de mesure  $l$ , sa faible largeur (très proche de la résolution instrumentale) montre que la cohérence des domaines magnétiques se prolonge le long de la colonne de croissance dans l'ensemble de l'épaisseur de la couche. Les mesures à la position 100 montrent la présence de trois pics. Le premier est une harmonique  $\lambda/2$  du substrat de MgO dont l'intensité reste importante, malgré les filtres, en raison du rapport de quantité de matière entre le substrat de MgO et la couche d'alliage. Le second pic correspond au signal magnétique 100 $y$  (du variant  $y$ ). Le troisième pic visible correspond au signal nucléaire 100 $x$  de surstructure (du variant  $x$ ). Compte-tenu de la proximité des paramètres de maille dans le plan, les deux pics se chevauchent. De la même façon, la position

<sup>1</sup>Cette partie sur l'étude par diffraction de neutrons de l'alliage MnPt à anisotropie planaire a été dépouillée avec Bernard Hennion du laboratoire commun CEA-CNRS Léon Brillouin.

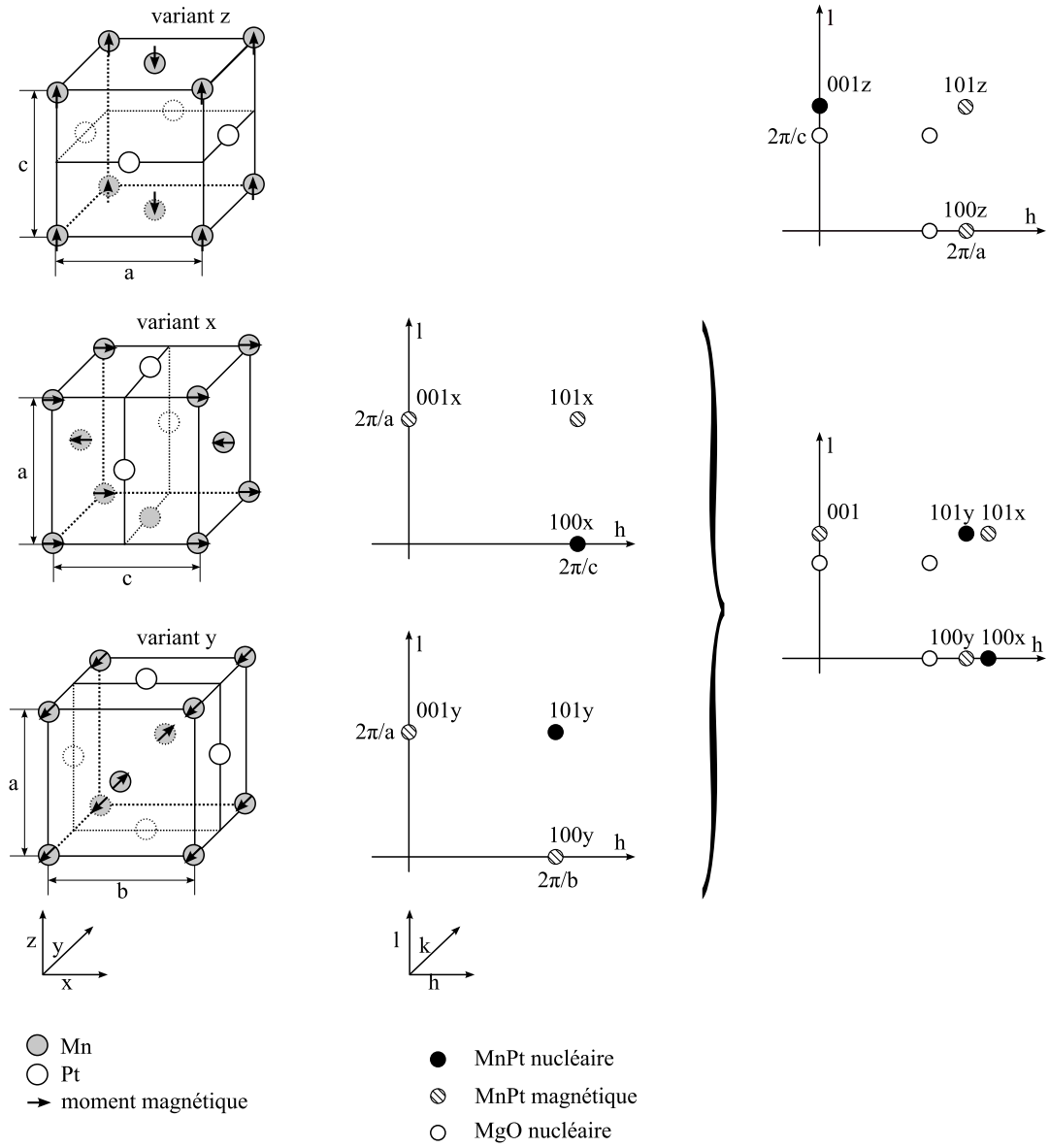


FIG. 4.1 – Schéma des variants  $L1_0$  du MnPt et position des pics attendus lors des expériences de diffraction de neutrons. Le dessin du haut correspond au variant à anisotropie perpendiculaire, les deux variants du bas correspondent aux variants à anisotropie planaire.



110 de l'espace réciproque donne accès, lorsqu'elle est parcourue dans la direction  $h$ , aux pics 110 $y$  (nucléaire) et 110 $x$  (magnétique). Ces deux pics se chevauchent également.

Dans la direction de croissance, la largeur du pic 001 est très proche de la résolution instrumentale. Il est difficile de déduire une taille précise de largeur de domaine à partir de cette mesure, cependant la mesure montre que les domaines magnétiques traversent une large épaisseur de l'échantillon. De même, les mesures dans la direction  $h$  montrent un pic 001 très fin. Le calcul de la largeur de domaine réalisée à partir d'un logiciel dédié disponible au laboratoire Léon Brillouin fournit une largeur de domaine magnétique de l'ordre de 20 nm. Cependant l'incertitude sur cette valeur est grande, compte-tenu de la proximité de la largeur du pic et de la résolution instrumentale. Ce calcul doit également tenir compte de l'élargissement dû à la mosaïque. Ce dernier a été choisi à 15 mrad, valeur compatible avec les mesures de diffraction des rayons x. L'étude de la largeur du pic 100 $y$  fournit une largeur de domaine structural de l'ordre de 6 nm dans la direction planaire. Cette valeur est compatible avec les observations de microscopie électronique.

Maintenant que nous avons vu que les mesures sont compatibles avec la structure proposée, passons en revue l'ensemble des structures possibles. L'étude de la structure magnétique des alliages L1<sub>0</sub> [94] montre quatre structures possibles. La structure I est ferromagnétique, nous ne la considérerons donc pas. Les trois autres structures sont antiferromagnétiques. La structure II présente des moments parallèles à l'axe  $c$ , il s'agit de celle que nous proposons dans le cas de nos échantillons. La structure III présente des moments perpendiculaires à l'axe  $c$ . La structure IV présente des moments de direction proche de ceux de la structure III et présentant une faible composante dans la direction  $c$ . La mesure par diffraction de neutrons étant sensible uniquement à la composante d'aimantation perpendiculaire au vecteur de diffusion, les intensités relatives des différents pics ne seront pas les mêmes pour ces différentes structures. Plaçons-nous dans les notations de la figure 4.1.

Supposons que les moments soient dirigés selon l'axe  $c$  (structure II). Dans ce cas, ces moments sont, pour les deux variants, toujours dans le plan perpendiculaire à la direction  $z$ . Le pic 001 traduit alors la périodicité magnétique selon la direction  $a$  de l'ensemble des variants. En revanche, un seul des deux variants est susceptible de donner un pic d'origine magnétique à la position 100, car un seul des deux variants porte des moments perpendiculaires à la direction du vecteur de diffusion dans ce cas de mesure.

Supposons maintenant que les moments soient dirigés selon la direction  $a$  (ou  $b$ ) de la structure MnPt (structure III). Pour le variant  $x$ , les moments peuvent ainsi être orientés selon  $y$  ou selon  $z$ . Ces deux orientations contribuent au signal du pic 100. Pour le variant  $y$ , les moments peuvent être orientés dans la direction  $x$  ou dans la direction  $z$ . Seuls les moments dans la direction  $x$  contribuent au signal du pic 100. De plus, seuls les moments dans les directions  $x$  et  $y$  contribuent au signal du pic 001 (magnétique).

Ces deux structures se distinguent ainsi par les intensités relatives des différents pics. Nous faisons l'hypothèse d'une équipartition des moments sur les directions qui leurs sont permises. Dans ce cas, pour la structure II, le pic 001 vient de l'ensemble des variants, et le pic 100 de la moitié. Pour la structure III, le pic 001 vient de la moitié des variants, et le pic 100 des trois-quarts. Il s'en suit que le coefficient  $I_{001}/I_{100}$  diffère d'un facteur 3 entre les deux structures proposées. L'étude quantitative de l'intensité des pics mesurés, réalisée par Bernard Hennion, montre que la structure II doit être préférée à la structure III. Enfin, la structure IV donnerait un résultat proche de la structure III, en raison de la proximité des orientations des moments de ces deux structures.

Nous arrivons ainsi à deux conclusions :

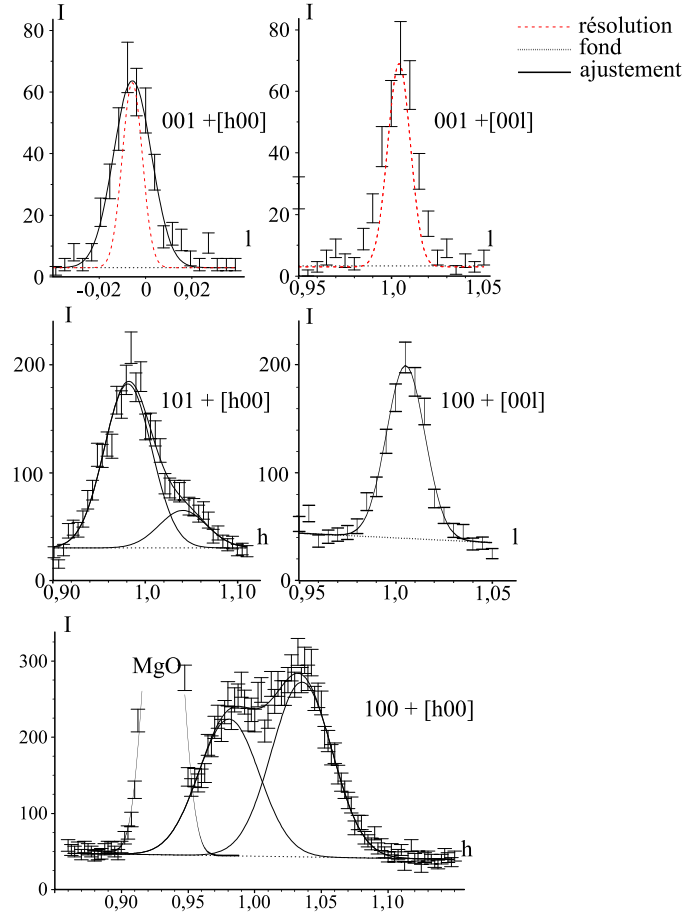


FIG. 4.2 – Ajustements obtenus pour les mesures de diffraction de neutrons de l'échantillon de MnPt codéposé. Les abscisses sont dans la base normée précisée au paragraphe 4.2. Les ordonnées sont en nombre de coups normalisés à l'intensité incidente. Les mesures ont été réalisées à température ambiante. L'échantillon a pour composition Pt (3 nm)/MnPt (80 nm)/Pt (45 nm)/Cr (3 nm)/MgO (100).

- la position des pics observés et les rapports de leurs intensités sont compatibles avec la structure proposée ;
- la grande finesse du pic 001 dans les deux directions mesurées montre le caractère monodomaine magnétique des variants structuraux.

#### 4.4 MnPt perpendiculaire

Nous allons maintenant étudier la structure magnétique de l'alliage MnPt déposé par la méthode couche par couche. Les mesures de diffraction de neutrons ont été entreprises sur un échantillon de MnPt/Cr/MgO. La couche de chrome sert à assurer le mouillage. Une épaisseur d'environ 77 nm de MnPt est obtenue par un dépôt à 450 °C de 203 bicouches atomiques de Mn et Pt. Une couche de 3 nm de Pt est déposée ensuite de façon à protéger l'alliage de l'oxydation.

Pour cet échantillon, la couche d'alliage n'a pas été déposée sur une couche tampon de

platine. Le flux de neutrons détecté après interaction avec le matériau est peu important, en raison de la faiblesse de l'interaction entre les neutrons et la matière et de la faible quantité de matière présente dans les couche minces. Les mesures sont, en conséquence, longues chacune de plusieurs heures. Pour des mesures réalisées jusqu'à 600 °C, la présence d'une couche tampon pourrait conduire à une forte diffusion du platine vers la couche d'alliage MnPt. D'autre part, les paramètres de maille de nos échantillons de MnPt sont proches de ceux du platine. Or dans le cas de couches tampon de platine, les études antérieures ont montré une relaxation complète des contraintes épitaxiales [129]. La couche de MnPt étant même plus épaisse que l'épaisseur habituellement utilisée pour une couche tampon (77 nm de MnPt au lieu de 45 nm de couche tampon de Pt), nous pouvons considérer que les contraintes épitaxiales dues à la croissance de MnPt sur MgO ont été en grande partie relaxées.

Les mesures sont effectuées sur le diffractomètre 4F1 du laboratoire Léon Brillouin. Ce diffractomètre présente les mêmes caractéristiques que le diffractomètre 4F2 utilisé précédemment et les flux de neutrons accessibles sur ces des deux instruments sont comparables. L'expérience réalisée consiste à chauffer l'échantillon progressivement. Des mesures de la position et de l'intensité des pics de diffraction effectuées à intervalles réguliers permettent de mettre en évidence les évolutions de la structure cristalline et magnétique de l'échantillon. Sur une durée de quatre jours, la température est portée de la température ambiante à 600 °C.

Lors de l'expérience, les pics correspondant aux positions 001, 100, 101 sont étudiés dans les directions de mesure  $h$  et  $l$  (figure 4.3).

#### 4.4.1 Évolution de la maille cristalline

Les paramètres de maille sont évalués à partir de la position des pics nucléaires et magnétiques sur les axes  $h00$  and  $00l$ , la position centrale du pic étant obtenue par ajustement gaussien. Lorsque plusieurs mesures sont disponibles, une moyenne des résultats est réalisée. Cette moyenne est pondérée par l'intensité mesurée par le moniteur.

Les mesures montrent, de façon générale, une augmentation du paramètre de maille lorsque la température augmente. Cependant, la dilatation thermique seule ne permet pas d'expliquer les résultats expérimentaux. L'évolution des paramètres  $a$  et  $c$  (figure 4.4) ou, de façon équivalente, le volume de la maille et le rapport  $c/a$  (figure 4.5), peut se décomposer en deux étapes. Le paramètre de maille perpendiculaire  $c$  diminue significativement entre 300 °C et 350 °C et le volume de la maille décroît corrélativement. À partir de 500 °C, les paramètres de maille planaire comme perpendiculaire évoluent significativement. Le rapport  $c/a$  diminue, tandis que le volume de la maille ne s'écarte que très peu du comportement linéaire avec la température lié à la dilatation thermique.

#### 4.4.2 Largeur des domaines

L'étude de la largeur des pics de diffraction apporte des informations relatives à la taille des domaines magnétiques. De façon générale, la largeur des deux pics décroît au cours de l'expérience (figure 4.6), mais l'amplitude de cette variation n'est pas la même dans le cas des différents pics étudiés.

Ainsi, le pic nucléaire 001 montre, pour sa largeur dans la direction  $l$ , une variation de grande amplitude traduisant un gain en cohérence de l'ordre dans l'échantillon dans la direction perpendiculaire. Une évolution est obtenue dès la température de 300 °C. Pourtant, le dépôt avait été réalisé à une température plus élevée. Bien que le dépôt ait été réalisé à 450 °C,

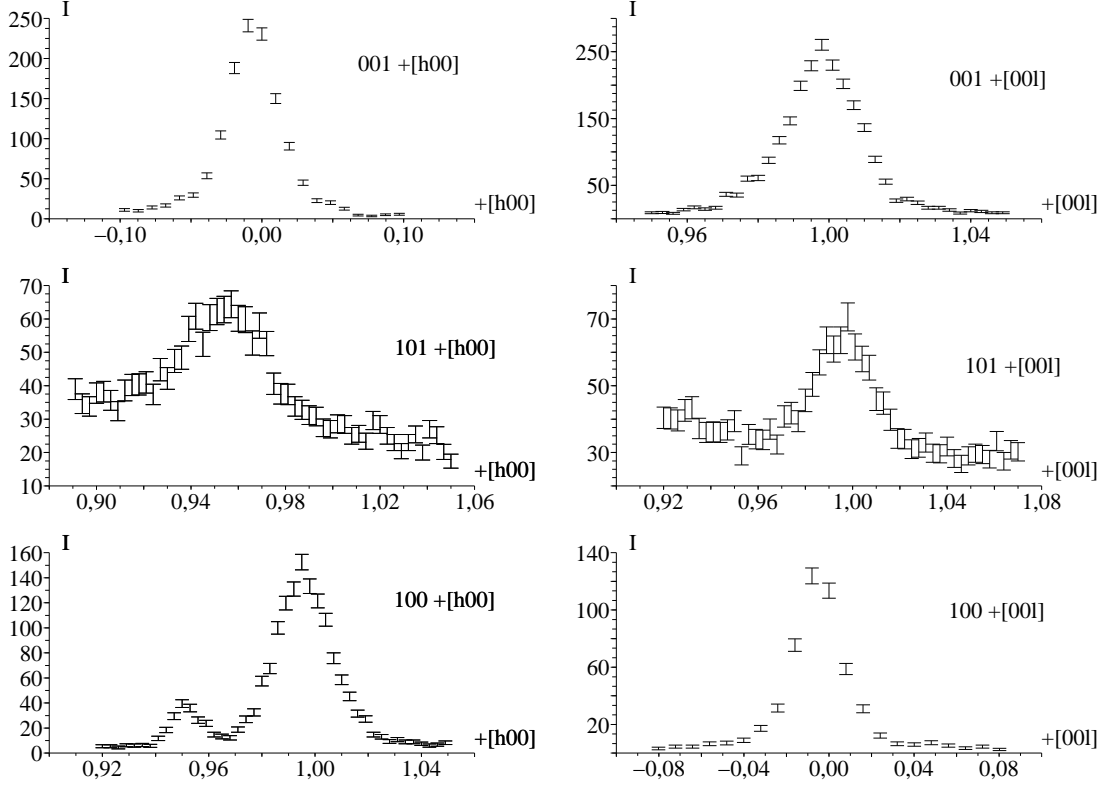


FIG. 4.3 – Courbes de diffraction de neutrons obtenues sur l'échantillon de MnPt déposé en couche par couche. Les mesures ont été réalisées sur les pics 001, 100 et 110. Les abscisses sont dans la base normée précisée au paragraphe 4.2. Les ordonnées sont en nombres de coups normalisés à l'intensité incidente. Les mesures du pic 110 ont été réalisées à 80 °C tandis les autres mesures ont été réalisées à 200 °C. L'échantillon étudié a pour composition Pt (3 nm)/MnPt (203 bicouches)/Cr (3 nm)/MgO (100).

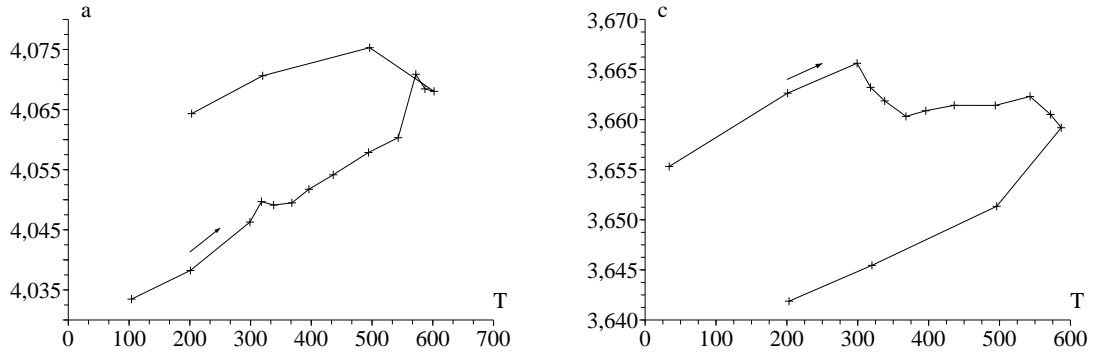


FIG. 4.4 – Évolution des paramètres de maille au cours de l'expérience. À gauche, paramètre planaire  $a$ , à droite le paramètre perpendiculaire  $c$ . L'abscisse donne la température (°C), l'ordonnée la valeur du paramètre en  $10^{-10}$  m. Des flèches indiquent le sens de progression des mesures. L'échantillon est le même que celui caractérisé sur la figure 4.3.

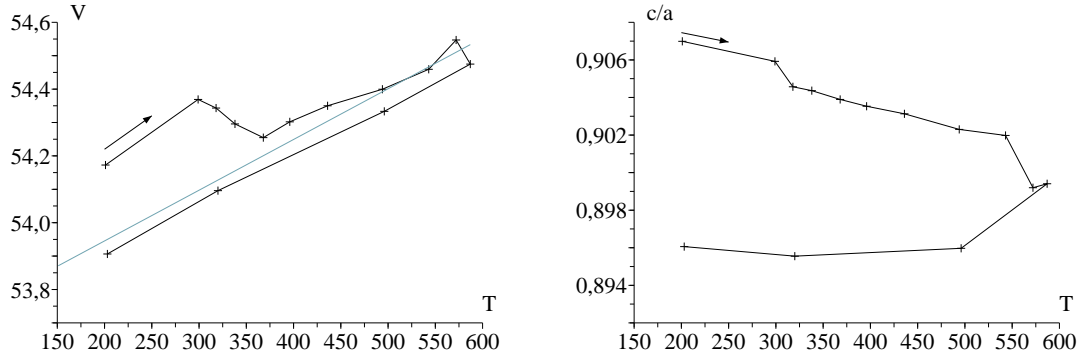


FIG. 4.5 – À gauche, évolution du volume de la maille, donné par  $a^2 \times c$ , au cours de l'expérience. L'abscisse donne la température ( $^{\circ}\text{C}$ ), l'ordonnée est en  $10^{-30} \text{ m}^3$ . À droite, évolution du rapport  $c/a$  au cours de l'expérience. Des flèches indique le sens de progression des mesures. L'échantillon est le même que celui caractérisé sur la figure 4.3.

les colonnes de croissance ne traversent pas, sans ce recuit ultérieur, l'intégralité de l'épaisseur de la couche. La mesure de ce même pic dans la direction  $h$  montre une évolution de bien plus faible amplitude, ce qui est cohérent avec le modèle de structure proposé. La présence, même minoritaire, de zones non ordonnées ou ordonnées selon un axe planaire qui croissent en colonnes empêche la formation de domaines de grandes dimensions latérales. L'évolution des pics magnétiques au cours de l'expérience est comparable à celle des pics nucléaires : la largeur associée à la direction perpendiculaire du pic 100 diminue plus que la largeur associée à sa direction planaire.

L'évolution de la largeur des pics indique des comportements différents aux températures où nous avons noté deux étapes distinctes dans l'évolution des paramètres de maille. À  $300^{\circ}\text{C}$ , la diminution du volume de la maille se fait parallèlement à une diminution de la largeur des pics (augmentation de la taille de domaines). À  $500^{\circ}\text{C}$ , la diminution du rapport  $c/a$  à volume constant ne correspond pas à une variation significative de la largeur des pics. Ces deux phénomènes peuvent être liés, respectivement, à la relaxation de contraintes épitaxiales résiduelles et à une augmentation du paramètre d'ordre à longue distance.

#### 4.4.3 Variants dans le plan

Le mode d'élaboration de cet échantillon donne une forte prédominance au variant d'axe  $c$  perpendiculaire au plan de l'échantillon. Il n'est cependant pas à exclure que des variants d'axe  $c$  dans le plan soient présents. Cela donnerait lieu à des pics supplémentaires, aussi bien nucléaires que magnétiques. Les mesures montrent cependant que ces variants sont de volume négligeable (figure 4.7). La faiblesse des pics éventuellement associés aux variants dans le plan empêche une quantification précise.

#### 4.4.4 Intensité du signal

L'évolution de l'intensité du signal magnétique avec la température (figure 4.8) permet de déterminer la température de Néel de l'alliage. Des balayages des pics 001 et 100 sont effectués dans les directions  $h$  et  $l$  de façon à intégrer correctement l'intensité du pic de

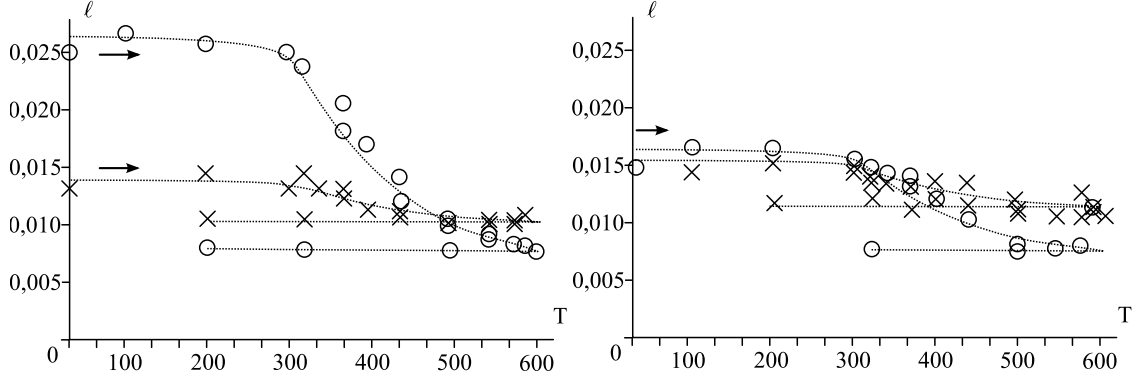


FIG. 4.6 – Évolution des largeurs des pics au cours de l'expérience. À gauche, pic nucléaire 001 (les cercles correspondent à la direction de mesure  $l$ , les croix correspondant à la direction  $h$ ). À droite, pic magnétique 100 (même convention). Les lignes pointillées sont un guide pour la lecture. Les ordonnées donnent la largeur à mi-hauteur  $\ell$  en unités normalisées de l'espace réciproque. Les abscisses donnent la température au cours de l'expérience, les premières mesures étant celles pour lesquelles la largeur est plus importante. L'échantillon est le même que celui caractérisé sur la figure 4.3.

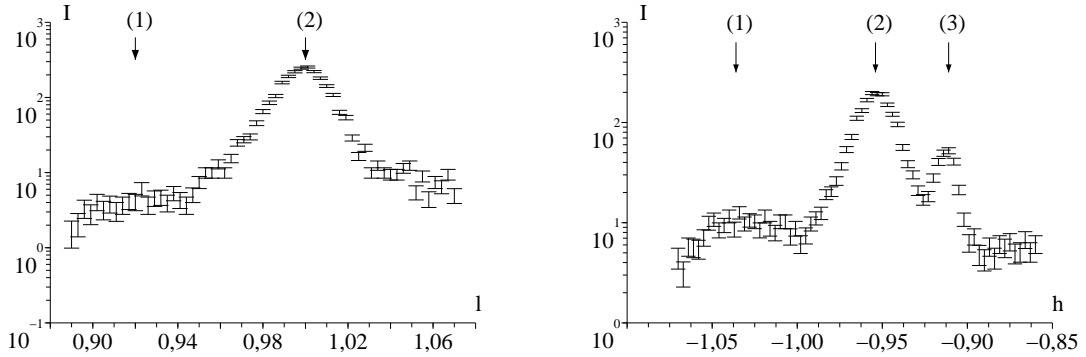


FIG. 4.7 – Mesures en diffraction de neutrons d'un échantillon à anisotropie perpendiculaire. À gauche, mesure à la position 001 dans la direction  $l$ . Les positions indiquées par (1) et (2) indiquent respectivement la position supposée du pic magnétique dû aux variants planaires et la position du pic nucléaire dû au variant à anisotropie perpendiculaire. À droite, mesure à la position 100 dans la direction  $h$ . Les positions indiquées (1), (2) et (3) indiquent respectivement une position supposée d'un pic de variants planaires, un pic correspondant à la contribution magnétique du variant perpendiculaire et un pic lié au substrat de MgO. L'abscisse est en unité normalisée de l'espace réciproque. En ordonnée le nombre de coups mesurés sur le détecteur, normalisé par l'intensité incidente. L'échantillon est le même que celui caractérisé sur la figure 4.3. La valeur du fond est, comme pour les autres mesures, de l'ordre de  $1 \text{ s}^{-1}$ .

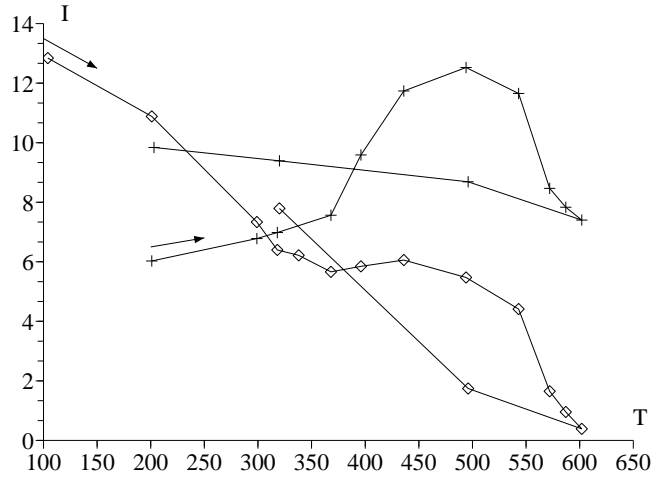


FIG. 4.8 – Évolution de l'intensité intégrée des signaux nucléaires (croix) et magnétique (losanges). Les lignes qui joignent les points servent de guide pour apprécier l'ordre des mesures indiqué par la flèche. En abscisse, la température ( $^{\circ}\text{C}$ ), en ordonnée l'intensité intégrée en unités arbitraires. L'échantillon est le même que celui caractérisé sur la figure 4.3.

diffraction. Nous suivons l'intensité des pics nucléaires et magnétiques. En effet la structure de l'échantillon évolue au cours de l'expérience. Cette évolution est d'autant plus rapide que la température est élevée. Notamment, un recuit à de hautes températures peut améliorer l'ordre chimique dans l'échantillon. De façon à tenir compte de cette évolution, nous supposons que le signal magnétique est proportionnel au volume de matière chimiquement ordonnée dans l'échantillon. Ce dernier étant proportionnel à l'intensité des pics nucléaires de surstructure, nous normaliserons le signal magnétique par le signal nucléaire.

Le signal magnétique, une fois normalisé (figure 4.9), présente une évolution monotone en fonction de la température. L'évolution en température croissante marque cependant, vers  $500^{\circ}\text{C}$ , une décroissance plus lente avant de s'annuler. Cet effet ne se manifeste pas lors de la branche du graphique en température décroissante. Il peut d'une part s'agir d'une évolution structurale de l'échantillon qui, en le rapprochant de sa structure d'équilibre, augmenterait sa température de Néel. Ainsi, le signal magnétique marquerait une légère augmentation avant de s'annuler pour la température de Néel. Cette évolution structurale serait selon cette hypothèse irréversible. La branche au refroidissement ne marquerait donc pas ce pic. Mais si tel était le cas, la température de Néel de l'alliage serait modifiée au cours de l'expérience. Le signal magnétique de la branche de refroidissement serait décalé vers de plus hautes températures, ce qui n'est pas observé.

Cette augmentation du signal près de la température de Néel rappelle l'effet Hopkinson [180]. Cet effet est associé à la transition entre l'état ferromagnétique (ferrimagnétique) et l'état paramagnétique. Il repose sur l'évolution différente du champ d'anisotropie et de l'aimantation du matériau avec la température et se manifeste par un pic de la susceptibilité (ferromagnétique en poudre fine [181]) ou de l'aimantation (spinelle ferrimagnétique [182]) lors du chauffage. De façon remarquable, l'effet Hopkinson ne s'observe que pour la branche du graphe pour laquelle la température croît, en raison de la différence de configuration



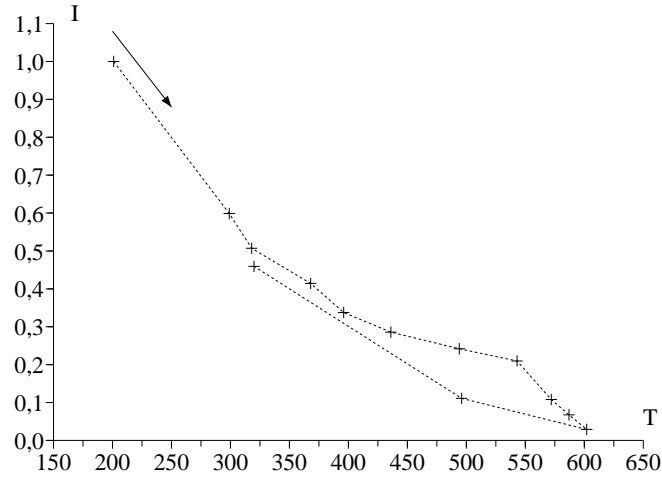


FIG. 4.9 – Évolution avec la température du signal magnétique normalisé au signal nucléaire. En abscisse, la température ( $^{\circ}\text{C}$ ), en ordonnée l'intensité intégrée en unités arbitraires. L'ordre des mesures est indiqué par une flèche. L'échantillon est le même que celui caractérisé sur la figure 4.3.

magnétique avant et après le passage de la température de Curie (ou de Néel pour un ferromagnétique). Dans le cas de MnPt, l'absence d'aimantation macroscopique ne permet pas de comprendre la différence de comportement entre la branche en température croissante et la branche décroissante. L'augmentation du signal pourrait alors plus simplement s'interpréter comme une modification structurale dont la contribution n'a pas été corrigée par le traitement numérique présenté plus haut. Dans la suite, nous retiendrons les mesures effectuées au refroidissement, dont l'évolution avec la température est monotone.

#### 4.4.5 Structure de l'échantillon

La température de Néel mesurée ici, de  $600^{\circ}\text{C}$  est plus faible d'environ  $100\text{ K}$  que la température obtenue dans le massif, de  $975\text{ K}$  [94, 97]. D'autre part, la décroissance du signal magnétique avec la température ne correspond pas à ce à quoi l'on pourrait théoriquement s'attendre dans le cas d'un antiferromagnétique (notamment en ce qui concerne la convexité de la courbe [183]). Des observations réalisées sur un système proche,  $\text{FePt}_3/\text{MgO}$  (110) [184], ne montrent pas ce comportement. De façon à expliquer ces différences, nous supposons qu'il existe au sein du matériau des inhomogénéités susceptibles de créer des variations locales de température de Néel.

Une première hypothèse peut être un effet de taille finie des grains magnétiques. Ce type d'effet a déjà été proposé pour l'étude de couches fines aussi bien ferromagnétiques [185] qu'antiferromagnétiques [182], avec des dispersions de particules de taille nanométrique proche de celle des cristallites présents dans nos couches [186].

Considérons d'abord que le moment magnétique  $m$  porté par les atomes d'un matériau ferromagnétique ou antiferromagnétique de température critique  $T_c$  est lié à la température par la relation suivante :

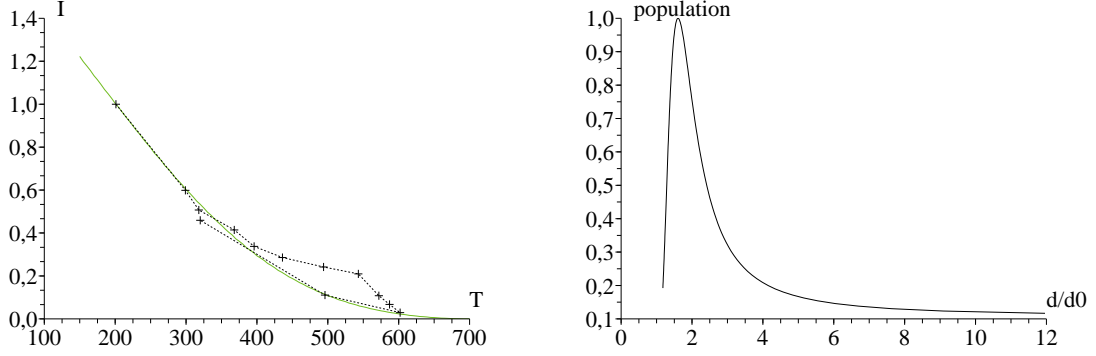


FIG. 4.10 – À gauche, superposition de l'évolution avec la température du signal magnétique (mêmes conventions que sur la figure figure 4.9) et de la simulation effectuée dans l'hypothèse de l'effet de taille finie des grains antiferromagnétiques, pour une température de Néel centrale de  $T_n = 600$  °C et un écart-type de 180 °C. À droite, distribution de tailles de grains de la simulation effectuée. En abscisses, la taille normée par la taille caractéristique  $d_0$  et en ordonnées, la population en unités arbitraires, ici calculée dans les cas  $\nu = 1/2$ .

$$m \propto \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^\beta$$

avec  $\beta = 1/2$ .

Supposons qu'il existe au sein du matériau une distribution gaussienne de températures de Néel [187] résultant d'une distribution en tailles de grains. Comme on le voit à gauche de la figure 4.10, une distribution caractérisée par  $T_n = 600$  °C et  $\sigma = 180$  °C permet de rendre compte de la forme de l'évolution des mesures expérimentales. Nous pouvons, à partir de ces données, obtenir des informations sur la structure microscopique du matériau. En effet, d'après le modèle des effets de taille finie, la température de Néel est liée à la taille de grains par la relation

$$\frac{T_{n\infty} - T_n}{T_n} = \left(\frac{d}{d_0}\right)^{-1/\nu}$$

où  $T_{n\infty}$  est la température de Néel du matériau massif, que nous supposerons égale à 975 K. Il nous est donc possible de caractériser la distribution de taille de grains. La partie droite de la figure 4.10 donne la distribution de taille qui rend le mieux compte des données expérimentales. D'après ce modèle, la distribution de tailles des grains de l'alliage marque un maximum vers  $1,6d_0$  et une valeur moyenne de  $1,8d_0$  (dans l'hypothèse classique  $\nu = 1/2$ ).

Il faudrait disposer de plusieurs échantillons de tailles de grains connues et différentes entre elles pour pouvoir évaluer le paramètre  $d_0$  et l'exposant  $\nu$ , et ainsi accéder pleinement à la distribution de taille magnétique effective au sein du matériau. Si l'on suppose que le maximum de la distribution correspond aux tailles de grains observées par microscopie, cela donne une taille  $d_0$  de l'ordre de 5 nm. Ce résultat n'est pas satisfaisant. Les systèmes comparables mesurés dans la littérature présentent une taille magnétique caractéristique de l'ordre de 1 nm, et la forte anisotropie magnétocristalline de l'alliage MnPt ne devrait pas conduire à une taille sensiblement plus élevée.

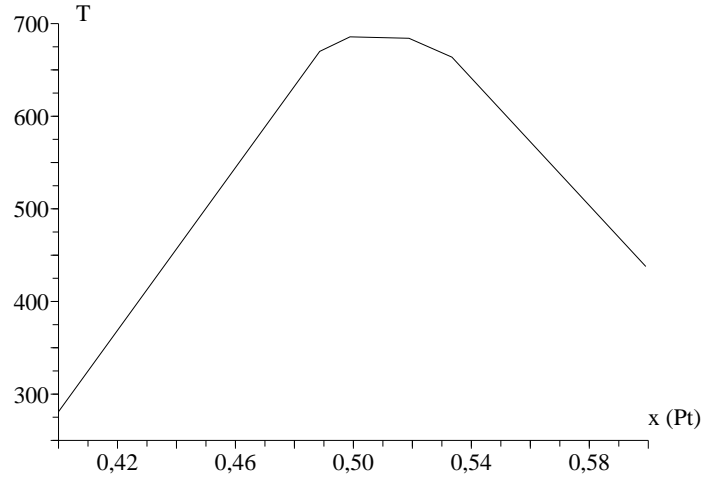


FIG. 4.11 – Température de Néel de l’alliage MnPt en fonction de sa composition. L’abscisse donne la composition atomique en platine, l’ordonnée donne la température de Néel (°C) interpolée d’après les données de [97].

Une autre explication à la valeur mesurée de la température de Néel consiste à supposer l’existence de variations de composition au sein du matériau. En effet, la température de Néel de l’alliage MnPt présente un maximum pour la composition équiatomique et diminue sensiblement lorsque la composition s’écarte de la composition stœchiométrique (figure 4.11).

Si l’on pondère cette distribution de températures de Néel par une distribution de population, il est possible d’estimer la température de Néel moyenne de l’échantillon. Une distribution gaussienne d’écart-type 6,5 % autour de la composition stœchiométrique rend compte d’une température de Néel de 600 °C. Un tel écart pourrait provenir de fluctuations locales de composition dues aux événements élémentaires lors du dépôt. Il peut aussi s’expliquer par un gradient de composition de l’échantillon. En effet, l’échantillon est élaboré de la taille la plus grande possible pour utiliser au mieux le faisceau de neutrons. En raison de la géométrie des flux incidents, un gradient de composition existe sur l’échantillon. Ce gradient varie en sens contraire pour les deux éléments codéposés, conduisant sur un échantillon de grande taille à un écart de composition de 5 % de part et d’autre de la composition stœchiométrique.

Enfin, une fluctuation du paramètre d’ordre à longue distance de l’échantillon pourrait exister dans l’échantillon. L’alliage MnPt perdant progressivement ses propriétés magnétiques lorsque l’état d’ordre diminue, une variation de l’ordre chimique devrait conduire à une variation de température de Néel. Nous ne disposons cependant pas des données nécessaires pour évaluer l’ampleur de la fluctuation nécessaire pour rendre compte des résultats expérimentaux. Il est vraisemblable que plusieurs effets coexistent au sein de l’échantillon et contribuent à diminuer la température de Néel par rapport à l’alliage massif.

## 4.5 Conclusion

Cette étude de la structure magnétique de MnPt est ainsi pleinement compatible avec les informations structurales obtenues précédemment et fournit des informations complémentaires :

- la structure magnétique est telle que les moments magnétiques sont parallèles à l'axe  $c$  ;
- l'alliage MnPt peut être élaboré avec une anisotropie magnétique planaire et une anisotropie magnétique perpendiculaire ;
- dans le cas des alliages à anisotropie planaire, les domaines structuraux (variants) sont monodomains magnétiquement ;
- les alliages élaborés ont une température de Néel de 600 °C.

# Conclusion

Rappelons tout d'abord la motivation initiale de ce travail : étudier l'interaction d'échange entre une couche ferromagnétique et une couche antiferromagnétique, dans un système bien défini qui permette une confrontation entre expérience et modélisation. Le choix s'est porté sur l'alliage MnPt en raison de la grande variété de comportements magnétiques dont il fait preuve, notamment en fonction de son état d'ordre chimique. La spécificité des expériences réalisées dans notre laboratoire est la possibilité d'obtenir des couches d'une grande qualité structurale par épitaxie par jets moléculaires.

Ce choix s'est révélé porteur. En effet, l'étude de ce système nous a permis de mettre en évidence plusieurs propriétés particulières de l'alliage MnPt et des bicouches couplées comportant MnPt comme alliage antiferromagnétique. Nous nous sommes également attachés à tirer de ce travail des conclusions plus générales, comme par exemple sur l'anisotropie induite par l'antiferromagnétique sur le ferromagnétique, ou sur le lien entre fluctuations d'aimantation et désordre.

Le développement de deux méthodes de croissance de couches de MnPt a permis d'élaborer des alliages présentant deux orientations pour l'axe quadratique associé à la mise en ordre chimique dans la phase  $L1_0$ . Cette orientation peut ainsi être soit dans le plan, soit perpendiculaire au plan de la couche mince. Si la première réalisation avait été rapportée par plusieurs auteurs, la mise en œuvre d'une méthode de croissance originale nous a permis d'obtenir des couches de MnPt à axe perpendiculaire d'une qualité auparavant inaccessible.

Ainsi, nous avons observé que la croissance de films minces d'alliage MnPt par codépôt des deux éléments Mn et Pt sur une surface Pt (001) conduit à une structure bivariee, présentant l'axe d'anisotropie dans le plan de la couche mince (suivant les directions  $[100]$  ou  $[010]$  du platine). L'étude par diffraction des rayons x démontre une mise en ordre chimique de l'alliage dans la phase  $L1_0$  pour des températures de substrat comprises entre la température ambiante et 500 °C. Ce résultat est à première vue étonnant au regard des observations antérieures effectuées par notre équipe lors de la croissance des alliages FePd et FePt, où l'ordre chimique est obtenu seulement pour des températures de substrat élevé. Dans le cas de ces derniers alliages, seul le variant d'axe d'anisotropie perpendiculaire est observé. Ce résultat semble pouvoir s'expliquer par une diffusion bien plus importante de l'élément Mn dès la température ambiante. De plus, l'apparition des variants d'axe d'anisotropie planaire, en supprimant la nécessité du transport entre plans atomiques pour obtenir lors d'un codépôt la structure chimiquement ordonnée, simplifie naturellement une mise en ordre à température modérée.

L'étude par microscopie électronique en transmission confirme la coexistence de cristallites présentant l'un ou l'autre des deux axes quadratiques, cristallites de taille nanométrique (environ 8 nm). L'orientation des joints entre cristallites – suivant les directions  $[110]$  du plan – est expliquée par la minimisation des contraintes élastiques au sein de la couche mince

d'alliage. Le faible désaccord de maille entre l'alliage et le substrat conduit par ailleurs à une très faible densité de défauts, ainsi que le montrent les observations de microscopie. Enfin, l'étude que nous avons conduite par diffraction de neutrons indique un volume de cohérence magnétique (taille de domaine au sein de l'antiferromagnétique) proche de la dimension des cristallites au sein de l'alliage MnPt.

Les résultats issus de la combinaison de ces observations en diffraction de neutrons et des études structurales fournissent ensuite, dans cette thèse, le socle de l'analyse (et de la modélisation) des mesures magnétiques. En observant les cycles d'hystérésis de couches minces Fe ou FeNi déposées du MnPt, nous avons mis en évidence un comportement complexe : l'anisotropie magnétique du ferromagnétique (Fe, FeNi) induite par l'échange avec l'antiferromagnétique, maxima du décalage de cycle en dehors de l'axe de recuit sous champ, asymétrie des cycles d'hystérésis entre les branches montantes et descendantes (autre le décalage du cycle), etc. Nous montrons que cette complexité peut se comprendre en terme de compétition entre les anisotropies intrinsèques aux couches ferromagnétiques et antiferromagnétiques, les aimantations de surface de ces deux couches étant couplées par échange à l'interface.

Les termes de la simulation numérique proposée, basée sur un modèle de type Stoner-Wolarth, nous ont en effet permis de reproduire les principales caractéristiques du comportement magnétique des bicouches couplées. Tout particulièrement, les deux anisotropies d'ordre 2 induites dans la couche ferromagnétique et la symétrie complexe du décalage de cycle de la couche ferromagnétique sont bien décrites. Également, nous avons montré que l'asymétrie des courbes d'hystérésis entre leurs branches montantes et descendantes pour certaines orientations du champ peut être expliquée par la compétition entre l'anisotropie de l'antiferromagnétique (qui tend à fixer l'orientation des spins d'interface) et le couplage avec le ferromagnétique (qui tend à entraîner les spins de l'antiferromagnétique lors du renversement de l'aimantation). Les simulations ont ainsi apporté les éléments indispensables à la compréhension de la relation entre moments non-compensés, anisotropies et champ de décalage.

À l'aide d'observations locales par microscopie de force magnétique (MFM), nous avons mis en évidence certains écarts expérimentaux entre le modèle proposé et la réalité physique : le renversement de l'aimantation se produit par propagation de parois lorsque la direction du champ appliqué est perpendiculaire à la direction du champ appliqué lors du recuit, et – semble-t-il – par rotation cohérente dans les autres cas. Ces observations sont conformes aux résultats attendus compte-tenu des symétries présentes dans le système. L'écart entre les hypothèses du modèle (renversement de l'aimantation par rotation cohérente) et le mécanisme de renversement effectivement observé donne la limite de validité du modèle, sans pour autant lui retirer son caractère prédictif pour de nombreux phénomènes. Cette différence de mode de renversement de l'aimantation explique également l'incapacité du modèle que nous avons proposé à reproduire l'amplitude du champ coercitif suivant les axes faciles du ferromagnétique.

À petite échelle encore, l'imagerie magnétique par MFM nous a permis d'observer des fluctuations d'aimantation au sein de la couche ferromagnétique. Ces fluctuations sont habituellement associées à une dispersion des propriétés de la couche ferromagnétique elle-même (rugosité, anisotropie, aimantation...). En nous fondant sur notre connaissance de la structure de la bicouche, il nous est apparu qu'elles sont, dans notre cas, plus particulièrement liées au couplage entre la couche ferromagnétique et la couche antiferromagnétique présentant une source intrinsèque de désordre local du fait de la présence des deux variants. Nous avons alors pu proposer une modélisation analytique et une interprétation semi-quantitative des fluctuations magnétiques observées (taille caractéristique, évolution sous champ). L'approche

développée ici pourrait être aisément étendue à d'autres systèmes étudiés dans la littérature.

**Perspectives** Soulignons la complexité mais aussi la cohérence des résultats que nous avons pu obtenir sur l'alliage MnPt. Il est cependant clair que certains points de l'étude mériteraient d'être menés plus avant, par exemple le couplage entre un ferromagnétique et l'alliage MnPt d'axe  $c$  perpendiculaire à la couche. En effet, ce système antiferromagnétique présente des propriétés de symétrie magnétique (du fait de l'orientation perpendiculaire des spins) remarquables pour une étude du couplage d'échange avec un ferromagnétique à aimantation planaire ou perpendiculaire. Tout particulièrement, les processus de renversement de l'aimantation hors du plan, dont l'importance a été soulignée même dans les systèmes à aimantation planaire dès la controverse sur la possibilité du couplage *spin-flop* [188], pourraient bénéficier d'une étude sur ce système. L'alliage MnPt élaboré ici par dépôt alterné de couches atomiques de Mn et Pt, essentiellement monocristallin, très pur et de faible rugosité apparaît être un système modèle favorable pour ces futurs développements expérimentaux.

Les résultats obtenus dans le cas du système FeNi/MnPt, selon lesquels le couplage créé par recuit en présence d'un champ dans la direction [110] (direction planaire à 45° des bords de l'échantillon) ne conduit pas à un champ de décalage (à l'inverse du recuit en présence d'un champ dans la direction [100] qui y conduit bien), pourraient être confirmés et mieux compris notamment à l'aide d'une étude du couplage en fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué lors du recuit.

Une étude de l'intensité du couplage en fonction de la température de recuit pourrait apporter des informations non seulement sur la température de blocage, mais également des informations complémentaires concernant la distribution de tailles des grains magnétiques.

Également dans la continuité de ce travail, une meilleure compréhension du couplage d'échange pourrait être obtenue grâce à une étude plus poussée de la structure magnétique. Par simulation numérique (de réseaux de spin), il doit être possible d'étudier l'impact de diverses localisation des moments piégés auxquels est attribué le décalage d'échange.





# A

## Techniques expérimentales

Dans cette annexe, nous décrivons les techniques expérimentales qui n'auraient pas été expliquées dans le cours du texte, ou pour lesquelles des détails particuliers doivent être donnés. Il s'agit de la préparation et du dépôt des échantillons et de la diffraction des rayons X.

### A.1 Élaboration des échantillons

L'épitanaxie par jets moléculaires consiste à apporter, dans une enceinte sous ultravide, la matière nécessaire à un dépôt sous la forme d'un faisceau de molécules ou d'atomes, sur un substrat monocristallin. Compte-tenu de la très faible pression résiduelle (dans la machine utilisée,  $P \simeq 5 \times 10^{-9}$  Pa), le libre parcours moyen des atomes est supérieur à la distance entre la cible et le substrat. Les atomes se déplacent alors de manière ballistique. Le bâti utilisé pour cette étude comporte deux évaporateurs à bombardement électronique. Chaque évaporateur est équipé de quatre creusets contenant chacun un métal pur. L'utilisation conjointe des deux évaporateurs permet ainsi de réaliser de nombreux alliages binaires. Les cibles, chauffées par un faisceau électronique, produisent une vapeur métallique. Un panneau refroidi par de l'azote liquide est placé entre la cible et l'échantillon. Il comporte des orifices qui permettent le passage de la vapeur métallique. Les deux évaporateurs ne pouvant être superposés au même endroit, le flux en leur provenance fait un angle de l'ordre de  $20^\circ$  avec la normale à l'échantillon (figure A.1). Le système est complété par deux cellules à effusion de Knudsen qui permettent, au besoin, d'évaporer d'autres métaux ou alliages.

La qualité des structures obtenues repose pour une grande part sur la qualité du vide dans l'enceinte d'évaporation. Le vide est maintenu par une pompe ionique. Périodiquement une pulvérisation de titane permet d'accroître la capacité de pompage et la qualité du vide. En cours de dépôt, la pression résiduelle est encore diminuée par l'utilisation d'un panneau refroidi à l'azote liquide. Ainsi, la pression dans l'enceinte en début de manipulation est de l'ordre de 10 nPa.

Le flux émis par chaque évaporateur est contrôlé par une balance à quartz. Il s'agit d'un cristal de quartz dont la fréquence de vibration dépend de la masse. Initialement, sa fréquence de résonance est de 6 MHz. La matière apportée par le flux gazeux du dépôt augmente la masse du cristal et diminue la fréquence de résonance du cristal d'une façon qui a été préalablement étalonnée. La variation de fréquence de vibration à la résonance permet de quantifier le flux

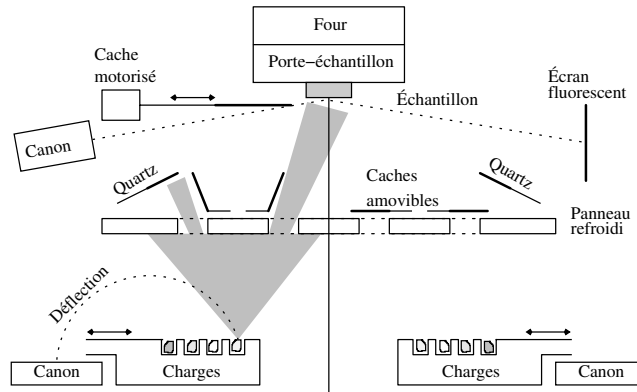


FIG. A.1 – Schéma du dispositif d'épitaxie.

instantané de vapeur. Ces cristaux, placés en vue du flux gazeux, sont protégés par un cache amovible qui évite une usure trop rapide.

La qualité de la croissance peut être suivie par diffraction d'électrons en incidence rasante à une énergie de 30 kV, ainsi que par d'autres instruments qui n'ont pas été utilisés pour ce travail (instruments de spectroscopie d'électrons Auger, de spectroscopie de photoémission X et de microscopie à effet tunnel).

Les éléments déposés dans ce travail nécessitent, pour leur évaporation, des conditions de chauffage assez différentes.

Ainsi, l'évaporation d'un flux suffisant de platine nécessite sa liquéfaction. Celle-ci se produit à une forte puissance de bombardement électronique. De façon à produire un flux le plus isotrope possible dans l'angle solide nécessaire à éclairer le substrat, la charge de platine ne doit pas se creuser, mais s'évaporer uniformément. Pour cela, un balayage de la cible par le faisceau électronique est nécessaire. Par ailleurs, le platine se liquéfiant à une température élevée, son évaporation requiert une puissance de bombardement élevée. Le flux atomique augmente ensuite lentement avec la puissance de bombardement, ce qui permet une régulation aisée du flux gazeux.

L'évaporation du manganèse aux pressions utiles se passe par sublimation. Celle-ci se produit dès des puissances de bombardement électronique très faibles et la pression de vapeur produite augmente rapidement avec celle-ci. Aussi, la régulation du flux gazeux est-elle plus difficile que pour le platine. Par ailleurs, les contraintes mécaniques générées par le chauffage de la cible causent sa fragmentation. L'homogénéité en température sur l'ensemble de la surface balayée par le faisceau électronique est ainsi plus difficile à obtenir. Un balayage réduit permet de ne chauffer qu'une zone de petite taille, la régulation est alors possible.

## A.2 Nature et préparation des échantillons

De façon à garantir une qualité constante des échantillons obtenus, la méthode de préparation des substrats est demeurée la même depuis plusieurs années. Ce protocole est ainsi également expliqué aux références [129, 189].

Les échantillons sont réalisés sur des substrats monocristallins de MgO de grande pureté, découpés selon un plan (100) et polis sur une face. Ces substrats sont en premier lieu dégraissés dans un bain de dichlorométhane pendant 15 minutes, puis rincés à la propanone (acétone)

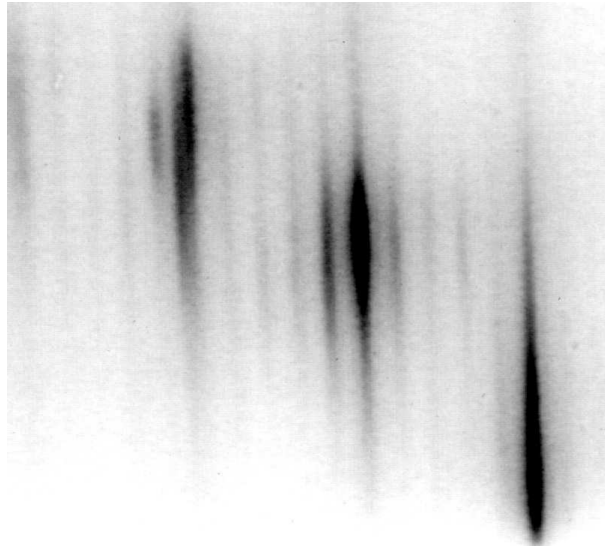


FIG. A.2 – Observation en diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante en incidence [100] sur une surface de platine montrant la reconstruction incommensurable dite «  $1 \times 5$  ».

et à l'éthanol. Les échantillons sont séchés sous flux d'azote. Les échantillons sont fixés sur un porte-objet en molybdène à l'aide d'indium fondu. Celui-ci mouille le porte-objet métallique et le substrat de magnésie. Une fois refroidi, l'indium solidifié fixe le substrat au support. Cette technique nécessite d'apporter un soin particulier au collage, de façon à ne pas introduire d'impuretés d'indium sur la face polie du substrat. Les échantillons sont dégazés par paliers jusqu'à 500 °C, le cycle durant au total 6 h. Les échantillons restent fixés au support par capillarité.

Une fois le dépôt réalisé, les échantillons sont décollés du support en faisant fondre l'indium. Cela nécessite le chauffage de l'échantillon à une température légèrement supérieure à 160 °C pendant une durée de l'ordre de la minute, ou même moins. Ce temps suffisamment court pour qu'aucune modification structurale ne survienne dans l'échantillon à cette température.

### A.3 Diffraction des rayons x

Les expériences de diffraction des rayons x ont été réalisées au Service général de rayons x. Le diffractomètre est un dispositif commercial de modèle Philips X-PERT à anode au Cobalt, permettant la rotation de l'échantillon selon deux axes. Le rayonnement émis est filtré par un monochromateur. Malgré cela, deux longueurs d'onde, très proches, sont présentes dans le signal :  $K_{\alpha 1} = 0,178\,897\text{ nm}$  et  $K_{\alpha 2} = 0,179\,285\text{ nm}$ , avec un rapport d'intensité  $I_{K_{\alpha 1}}/I_{K_{\alpha 2}} \simeq 2$ .

Les angles sont définis sur la figure A.3 et la figure A.4 rappelle la construction d'Ewald et les types de mesures effectuées. Les mesures réalisées les plus fréquemment sont de type  $\theta - 2\theta$ . Ces mesures permettent de maintenir le vecteur de diffusion  $q$  perpendiculaire à la surface de l'échantillon et ainsi de sonder les plans parallèles à la surface. Cette mesure permet d'obtenir des informations sur le paramètre de maille dans la direction de croissance. Les mesures de type  $\omega$  s'effectuent une fois le diffractomètre réglé sur un pic de diffraction, en faisant varier

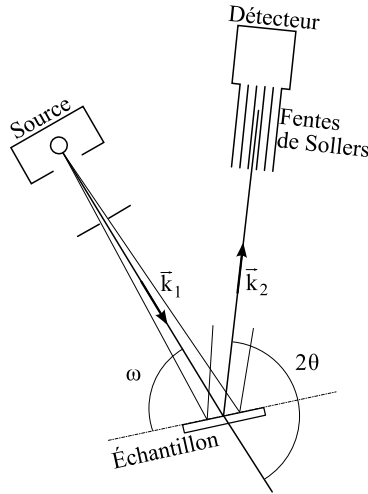


FIG. A.3 – Schéma du diffractomètre à rayons X. L'angle  $\omega$  concerne la rotation de l'échantillon seul, l'angle  $2\theta$  la rotation du détecteur seul.

l'angle  $\omega$  de l'échantillon. Ces mesures permettent d'obtenir des informations sur la taille des cristallites dans la direction du plan.

#### A.4 Recuit sous champ

Les échantillons destinés à des mesures de couplage d'échange doivent suivre une procédure de recuit sous champ afin, suivant la théorie actuellement admise, de créer un ensemble de moments non compensés de résultante non nulle au sein de l'antiferromagnétique.

Le recuit sous champ est réalisé dans un tube en inox non magnétique placé sous vide secondaire, de vide de base inférieur à  $10^{-4}$  Pa. L'élément chauffant est un cylindre en acier d'axe horizontal comportant une partie plate. Sur cette dernière est fixée une plaquette en cuivre servant à homogénéiser la température et à recevoir l'échantillon. Un couvercle en cuivre est fixé au-dessus de cette plaquette. La masse du four comporte un crayon chauffant, un tube creux permettant de faire circuler un fluide de refroidissement et un thermocouple. Autour du tube constituant le four, un aimant permanent peut être positionné de façon coplanaire ou perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Ce dernier crée en son centre un champ d'environ 350 mT dans l'air.

Un régulateur de température permet d'atteindre la consigne avec un dépassement de l'ordre de quelques Kelvins puis de stabiliser la température. La consigne est maintenue pendant 600 s de façon que l'on puisse raisonnablement supposer que la température a été atteinte de façon homogène à proximité de l'échantillon. Passé ce délai, l'alimentation du four est coupée et la température de l'échantillon décroît (figure A.5). À une température de 530 K, proche de la température de blocage de l'alliage MnPt en couche mince (voir paragraphes 1.1.1 et 1.3), la vitesse de décroissance de la température est de  $6 \times 10^{-2}$  K/s. Cette vitesse sera considérée comme suffisamment lente pour que la configuration magnétique obtenue soit proche de l'équilibre.

Lors de l'ouverture du four, la position de l'échantillon est vérifiée visuellement pour déceler un changement de position que l'échantillon pourrait avoir subi pendant la phase de

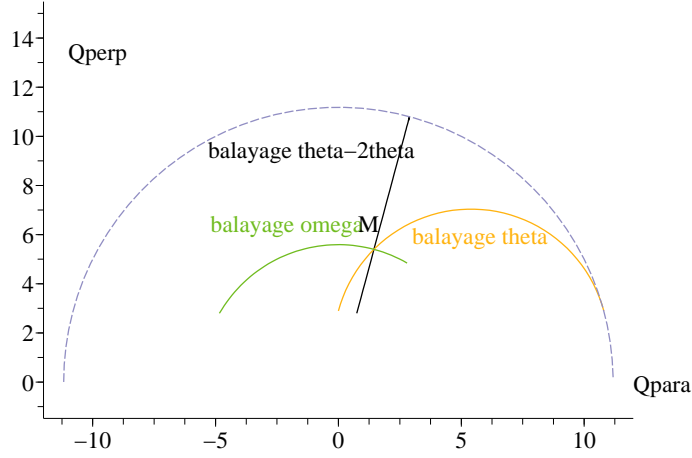


FIG. A.4 – Figure donnant, autour du point  $M$  de l'espace réciproque, les balayages  $\omega$ ,  $\theta$  et  $\theta - 2\theta$  possibles pour une mesure en réflexion. Le point  $M$  choisi pour l'illustration correspond à une mesure centrée sur  $(\omega, 2\theta) = (\pi/6, \pi/3)$ . Le balayage  $\omega$  (en vert) est donné pour  $0 \leq \omega \leq \pi/3$ , le balayage  $\theta$  (en jaune) correspond à  $2\pi/3 \leq 2\theta \leq \pi$ . Le balayage  $\theta - 2\theta$  (en noir) correspond à  $0 \leq \omega \leq \pi/2$ , avec  $2\theta/2 - \omega = \pi/6$ . L'abscisse donne  $q_{//}$  ( $\text{nm}^{-1}$ ), l'ordonnée  $q_{\perp}$  ( $\text{nm}^{-1}$ ), calculés pour une diffraction à la longueur d'onde de la raie  $K\alpha$  du Cobalt. Le cercle en pointillés (bleus) correspond à la limite  $2\theta = \pi$ .

pompage primaire.

## A.5 Irradiation

L'irradiation (figure A.6) est réalisée à l'aide d'un faisceau d'ions  $\text{He}^+$  monocinétiques. Les ions sont produits par ionisation d'hélium puis accélérés par une tension qui peut être choisie entre 5 kV et 20 kV. Un électroaimant dirige le faisceau vers l'échantillon. Cette conception permet d'éliminer les atomes (neutres) et les ions autres que  $\text{He}^+$ . Des plaques chargées dévient périodiquement le faisceau de façon à balayer la surface de l'échantillon. Le faisceau ionique, dont le diamètre est de l'ordre de quelques millimètres, balaye l'échantillon dans les directions horizontale et verticale, respectivement à 60 Hz et 400 Hz. Cela garantit une irradiation uniforme dans une zone de  $15 \times 15 \text{ mm}^2$ . Le flux d'ions généré est de l'ordre de  $1,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . La description complète de la source d'irradiation est décrite à la référence [190].

La température du dispositif de chauffage peut être mesurée à l'aide d'un thermocouple, et la température à la surface du porte-échantillon a été vérifiée en mesurant le point de fusion d'un échantillon d'alliage CuAl de composition présentant un eutectique à 548 °C.

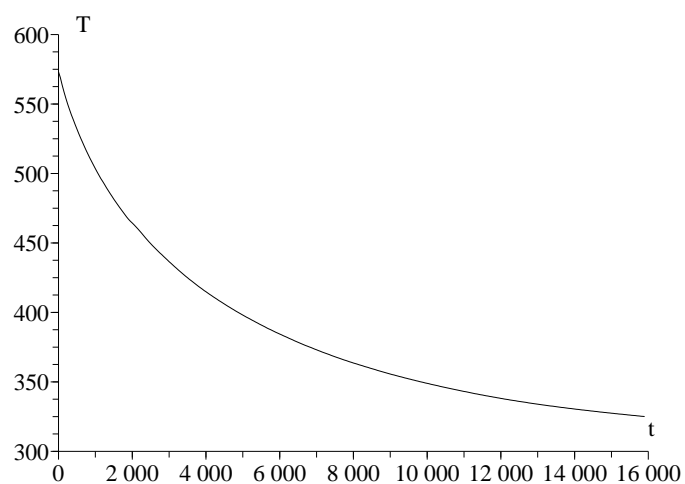


FIG. A.5 – Évolution de la température dans le four de recuit sous champ. En abscisses, le temps (secondes), en ordonnées la température mesurée à l'aide d'un thermocouple (Kelvins).

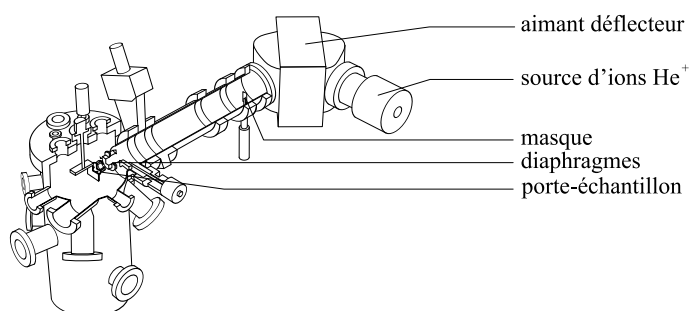


FIG. A.6 – Illustration du dispositif d'irradiation.



# B

## Paramètre d'ordre

Le calcul du paramètre d'ordre réalisé dans ce mémoire est basé sur la mesure de l'intensité intégrée du rayonnement x diffracté par l'alliage. Les mesures sont réalisées dans les conditions expliquées à l'annexe A. Avant de présenter le calcul du paramètre d'ordre lui-même, étudions les différents termes qui interviennent dans l'expression de l'intensité diffractée.

### B.1 Intensité issue d'une diffraction des rayons x

#### B.1.1 facteur de structure

Une modélisation approchée du facteur de diffusion atomique est proposée dans les Tables internationales de cristallographie [191], sous la forme :

$$f_s = f_0 + f' + if'' \quad (\text{B.1})$$

où

$$f_0 = \sum_i a_i \exp -b_i \left( \frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2 + c \quad (\text{B.2})$$

Les valeurs numériques nécessaires au calcul sont fournies à la table B.1.

Le facteur  $B$  ou facteur de Debye-Waller doit ensuite être pris en compte comme suit :

$$f = f_s \exp \left[ -B \left( \frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2 \right] \quad (\text{B.3})$$

Une discussion sur les valeurs utilisées est donnée plus loin.

#### B.1.2 Corrections géométriques

Le facteur de Lorentz est une correction géométrique s'appliquant aux mesures effectuées à des intervalles angulaires constants, plutôt qu'à des mesures effectuées dans les unités de l'espace réciproque. Ce facteur permet de prendre en compte le changement de volume de l'élément différentiel d'intégration entre l'espace direct et l'espace réciproque. En effet, l'intensité mesurée est proportionnelle au temps passé à une position donnée, mais la taille du

Élément	constantes
Mn	$a = [11, 2819; 7, 3573; 3, 0193; 2, 2441]$ $b = [5, 3409; 0, 3432; 17, 8674; 837543] \times 10^{-20}$ $c = 1, 08960$ $f' = -2, 0793$ $f'' = 3, 5549$
Pt	$a = [27, 0059; 17, 7639; 15, 7131; 5, 7837]$ $b = [1, 51293; 8, 81174; 0, 424593; 38, 6103] \times 10^{-20}$ $c = 11, 6883$ $f' = -4, 0461$ $f'' = 8, 7578$

TAB. B.1 – Valeurs numériques nécessaires pour le calcul des facteurs de structure. Le coefficient  $b$  est exprimé en  $\text{m}^2$ , les autres paramètres n'ont pas de dimension.

petit intervalle mesuré, exprimée dans les unités de l'espace réciproque, varie avec l'angle de mesure dans l'espace direct. Le facteur de Lorentz correspond au déterminant de la matrice jacobienne du changement de base. Nos mesures étant converties en unité de l'espace réciproque avant intégration numérique, le facteur de Lorentz n'apparaît pas explicitement dans notre formalisme.

L'effet de polarisation combiné à la réflexion sur l'échantillon conduit au facteur :

$$P = \frac{1 + \cos^2(\omega + 2\theta/2) \cos^2 2\alpha}{1 + \cos^2 2\alpha} \quad (\text{B.4})$$

avec  $\alpha = 0, 2320$  rad dans le cas du monochromateur au graphite.

### B.1.3 Correction d'ouverture arrière

La mesure du volume d'un pic nécessite la connaissance de sa largeur dans trois directions orthogonales de l'espace réciproque, en plus de son intensité maximale. Pour un pic de type  $00l$ , une mesure dans la direction radiale et une autre selon  $\omega$  fournissent deux de ces largeurs. Une troisième direction peut correspondre à une rotation de l'échantillon sur lui-même, selon l'axe horizontal perpendiculaire à l'axe de rotation  $\omega$ , et que l'on nommera dans la suite  $\varphi$ .

La rotation selon  $\varphi$  n'est pas accessible de façon motorisée dans la machine utilisée et les mesures n'ont donc pas été entreprises de façon automatique. Cependant, pour des raisons de symétrie, on peut supposer que les sources d'élargissement selon deux directions perpendiculaires du plan de l'échantillon auront les mêmes propriétés, c'est-à-dire  $l_\omega = l_\varphi$ . Pour un pic de type  $00l$ , on aboutit à  $I = I_m l_\omega^2 l_{\theta-2\theta}$ . Mais le détecteur utilisé dispose d'une largeur non négligeable dans la direction où agit  $\varphi$ . Pour la plupart des pics étudiés, dont la largeur à mi-hauteur est de l'ordre de  $1^\circ$ , l'ensemble de l'intensité répartie dans la direction  $\varphi$  est mesurée par le détecteur. Cependant, les mesures du pic de surstructure  $001$  montrent que le pied du pic peut être large de plusieurs degrés (figure B.3), laissant supposer qu'une part de l'intensité n'atteint pas le détecteur. Il convient donc de vérifier si l'intégration dans cette direction est totale, ou si un facteur correctif doit être pris en compte.

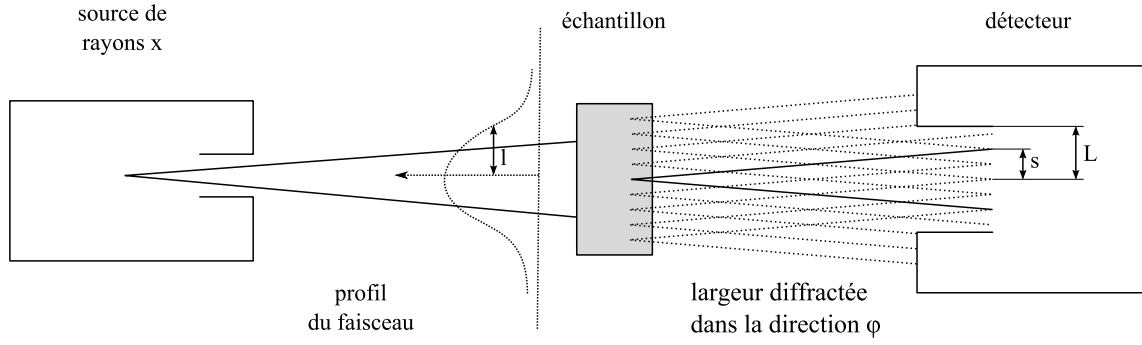


FIG. B.1 – Schéma montrant l'effet de la largeur de la fente arrière : une partie du signal diffracté n'atteint pas le détecteur. La largeur angulaire du signal coupé dépend de la convolution du profil du faisceau et de la largeur selon  $\varphi$  du faisceau diffracté.

Pour cela, appelons  $I_f$  le faisceau issu du tube à rayons x (figure B.1). Nous le supposons de profil gaussien de paramètre  $l_f$  :

$$I_f(\alpha) = \frac{I_0}{\sqrt{l_f}} e^{-\frac{1}{2} \left( \frac{\alpha}{l_f} \right)^2} \quad (\text{B.5})$$

où  $\alpha$  est l'angle d'observation du faisceau. Le paramètre de largeur angulaire  $l_f$  de ce faisceau a été évalué sachant qu'il forme une tache de 4 mm sur les fentes du détecteur.

Deux profils de pics de diffraction, correspondant aux mesures expérimentales, ont été étudiés. Un profil gaussien de paramètre  $l_p$ , et un profil triangulaire défini par :

$$I_p(\alpha) = \begin{cases} \frac{1}{2l_p} \left( 1 - \frac{1}{2l_p} \alpha \right) & \text{si } 0 \leq \alpha \leq 2l_p \\ \frac{1}{2l_p} \left( 1 + \frac{1}{2l_p} \alpha \right) & \text{si } -2l_p \leq \alpha < 0 \\ 0 & \text{si } |\alpha| > 2l_p \end{cases} \quad (\text{B.6})$$

Le détecteur est représenté par une porte de largeur à mi-hauteur  $l_d$  et définie par :

$$p(\alpha) = \begin{cases} 1 & \text{si } -l_d \leq \alpha \leq l_d \\ 0 & \text{si } |\alpha| > l_d \end{cases} \quad (\text{B.7})$$

Le signal est alors obtenu comme la convolution du faisceau incident avec le profil du pic de diffraction, ensuite filtré par le détecteur :

$$s = (I_f \otimes I_p) \times p \quad (\text{B.8})$$

On obtient ainsi une expression qui lie le signal mesuré au travers de la porte (signal mesuré expérimentalement) et le signal diffracté total auquel on souhaite avoir accès. On obtient enfin le coefficient de correction dû à la largeur finie de la porte :

$$r = \frac{\int_{\alpha} I_f \otimes I_p d\alpha}{\int_{\alpha} (I_f \otimes I_p) \times p d\alpha} \quad (\text{B.9})$$

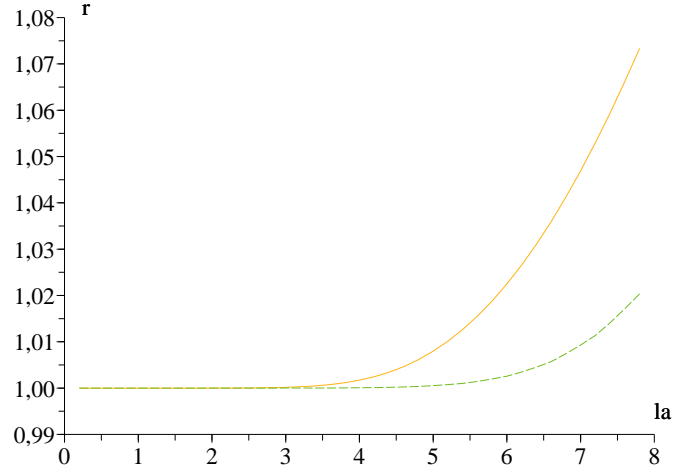


FIG. B.2 – Facteur de correction  $r$  à appliquer dans deux cas de profils de pics : gaussien (trait plein) et triangulaire (pointillés). L'application numérique est faite pour un faisceau de 4 mm de largeur à mi-hauteur sur le détecteur en l'absence d'échantillon, des fentes de 11 mm de demi-largeur, une distance entre le centre de rotation et les fentes valant 200 mm, et un angle de mesure  $2\theta = 28^\circ$  (correspondant au pic 001). L'abscisse donne la largeur à mi-hauteur  $l_a$  du pic simulé, en degrés.

La figure B.2 illustre le résultat d'un calcul de ce coefficient de correction. La convolution et l'intégration ont été réalisées numériquement. La correction ne devient perceptible qu'à partir de  $5^\circ$  de largeur, et devient significative à partir de  $10^\circ$  (figure B.2). De telles largeurs ont pu être observées sur des pics de type 001. La figure B.3 illustre un profil en  $\omega$  d'un pic 001. Il présente un aspect triangulaire et un pied assez large. Un tel facteur de correction est de l'ordre de quelques pourcents.

#### B.1.4 Facteur d'absorption

L'interprétation quantitative des intensités nécessite également la prise en compte d'un facteur d'absorption des rayons X dans la couche métallique. Le calcul de ce coefficient implique la connaissance de la longueur caractéristique d'absorption [192]. Cette longueur se calcule à partir du facteur de diffusion atomique dont un modèle a été rappelé plus haut.

L'indice optique pouvant être écrit  $n = 1 - \delta - i\beta$ , on a :

$$\mu = \frac{4\pi\beta}{\lambda} \quad (\text{B.10})$$

où  $\mu$  est le coefficient d'absorption linéaire.

$\beta$  se calcule comme suit :

$$\beta = r_e \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_i N_i f_i'' \quad (\text{B.11})$$

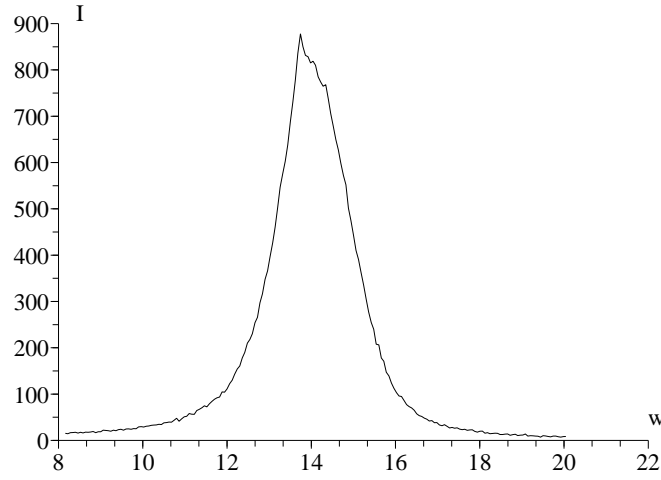


FIG. B.3 – Profil  $\omega$  d'un pic 001 d'un alliage déposé par couche par couche à 400 °C. L'abscisse donne la position angulaire  $\omega$  (degrés), l'ordonnée l'intensité mesurée en coups par seconde.

avec  $r_e = 2,817\,940\,325 \times 10^{-15}$  m [193],  $N_i$  et  $f_i''$  représentant respectivement la densité atomique et la partie imaginaire du coefficient de diffusion atomique de l'espèce  $i$ .

Le faisceau provenant de chaque pic de diffraction est atténué par les couches métalliques traversées situées au-dessus de la couche diffractante. L'intensité du faisceau émergent se calcule en prenant en compte le facteur d'absorption sur le chemin incident et émergent du faisceau. Nous négligerons par ailleurs la réfraction du faisceau de rayons x à l'interface entre les couches (ce phénomène n'est vraiment sensible qu'à faible incidence). Nous utiliserons donc  $\omega$  et  $\theta$  respectivement comme angles d'incidence et d'émergence du faisceau. L'atténuation pour les couches entièrement traversées s'écrit :

$$A = \prod_k \exp(-\wp_k h_k) \quad (\text{B.12})$$

avec  $\wp_k$  :

$$\wp_k = \mu_k \left( \frac{1}{\sin \omega} + \frac{1}{\sin \theta} \right) \quad (\text{B.13})$$

Si l'on prend en plus en compte le facteur lié à la surface éclairée et l'absorption dans la couche  $j$  diffractante considérée, l'intensité émergente  $I_e$  s'écrit en fonction de l'intensité incidente  $I_i$  :

$$I_e = A \frac{1}{\sin \omega} \frac{1 - \exp(-\wp_j h_j)}{\wp_j} I_i \quad (\text{B.14})$$

### B.1.5 Évolution de l'intensité en fonction des réflexions

L'intensité diffractée peut évoluer en fonction de l'ordre de la diffraction, pour au moins deux raisons. Une première raison est l'agitation thermique, une seconde à cause des extinctions.

L'agitation thermique est prise en compte par un facteur s'appliquant sur le facteur de structure. Dans l'approximation harmonique des mouvements des atomes, son expression est :

$$T = e^{-B_j \sin^2 \theta / \lambda^2} \quad (\text{B.15})$$

où  $B_j$  est un facteur lié au désordre des atomes sur le réseau cristallin. Nous ferons l'hypothèse que ce coefficient est isotrope, en l'absence de données nous permettant de mesurer sa valeur dans plusieurs directions du cristal. Nous ferons également l'approximation que ce coefficient est identique pour les différents éléments en présence, mais peut ne pas être le même pour les raies fondamentales et les raies de surstructure. La valeur du coefficient  $B_j$  sera mesurée empiriquement par régression linéaire à partir de l'intensité de plusieurs raies, pour les raies fondamentales ou de surstructure [194].

Les extinctions primaires et secondaires sont également une source de baisse d'intensité des pics les plus intenses. Ces contributions se rencontrent dans le cas de monocristaux de qualité particulièrement bonne et nous les négligerons.

### B.1.6 Mélange de pics

Dans le cas où des pics sont proches au point de se mélanger, deux stratégies sont possibles :

- Effectuer un ajustement aux moindres carrés à partir de modèles de pics, de façon à extraire les contributions de chacun ;
- Mesurer le volume total des pics et déduire d'une autre source d'information la part attribuable à chacun.

La première stratégie présente l'avantage de s'adapter très bien aux données expérimentales, sans avoir à émettre d'hypothèses sur la structure. Cependant, dans le cas où les pics sont très peu espacés par rapport à leur largeur, il est difficile d'attribuer à chaque pic la part de son intensité. En effet, l'algorithme d'ajustement cherchera à approcher au mieux le profil expérimental, parfois au prix de modèles de pics peu vraisemblables pour l'un ou l'autre pic. Il est alors nécessaire de poser des hypothèses supplémentaires, par exemple imposer la position des pics qui peut être caractérisée par ailleurs.

La deuxième stratégie présente l'avantage de mesurer le volume total de façon non ambiguë. L'évaluation de l'intégrale du pic nécessite cependant des hypothèses concernant la part du signal attribuable à chaque pic. Il faut notamment prendre en compte l'absorption dans la couche tampon et dans la couche d'alliage déposée au-dessus.

Supposons donc qu'ayant mesuré l'intensité totale des deux pics superposés, nous souhaitons discriminer l'intensité provenant de la couche tampon de celle provenant de l'alliage. Pour calculer le facteur de correction qui s'applique, écrivons que l'intensité diffractée est proportionnelle au nombre d'atomes diffractant et au carré du module du facteur de structure, ainsi qu'à un coefficient d'absorption, et ce pour les deux couches.

Les couches entièrement traversées (situées au-dessus de la couche d'intérêt) conduisent à un taux d'absorption  $A$  explicité plus haut. Pour la couche tampon :

$$I_t = \alpha F_t \bar{F}_t A_{1 \rightarrow t} \frac{1 - A_t}{\wp_t} \quad (\text{B.16})$$

$\alpha$  étant une constante de proportionnalité.

De même pour la couche d'alliage :

$$I_a = \alpha F_a \bar{F}_a A_{1 \rightarrow a} \frac{1 - A_a}{\wp_a} \quad (\text{B.17})$$

Le facteur de correction  $f_c$  à appliquer aux mesures s'écrit comme suit :

$$f_c = \frac{1}{1 + \frac{I_t}{I_a}} \quad (\text{B.18})$$

## B.2 Paramètre d'ordre

Les calculs précédents nous permettent d'évaluer le rapport d'intensité entre les pics de surstructure et les pics fondamentaux. Or cette intensité est proportionnelle au carré du paramètre d'ordre. Pour calculer le paramètre d'ordre, nous représentons l'expression de l'intensité  $I_c$  corrigée des facteurs exposés plus haut :

$$s(q^2) = \sqrt{I_c} = \sqrt{\frac{f_c I}{4PAF_a \bar{F}_a}} \quad (\text{B.19})$$

La fonction  $s$  est ensuite représentée sur une échelle semi-logarithmique, en fonction de  $q^2$ , pour plusieurs points  $(I, q)$  provenant des pics fondamentaux et de surstructure. Pour les pics fondamentaux et pour les pics de surstructure, une régression linéaire est alors faite. Celle-ci fournit les ordonnées à l'origine  $o_f$  et  $o_s$  pour la distribution des pics fondamentaux et pour ceux de surstructure. Le paramètre d'ordre à longue distance se calcule alors comme suit.

$$S = 10^{o_s - o_f} \quad (\text{B.20})$$

## B.3 Cas des couches à axe $c$ planaire

Sur le dispositif utilisé, avec la longueur d'onde du Cobalt, les pics de surstructure accessibles sont les pics 102,  $\bar{1}02$ , 103,  $\bar{1}03$ , 104,  $\bar{1}04$  et 203. Ceux-ci proviennent de deux jeux de variants : 102, 104 du variant  $x$ , 103 et 203 du variant  $y$ . Nous supposons que nous pouvons utiliser conjointement leurs intensités pour déterminer le paramètre d'ordre. Cela est justifié par le fait que les populations des deux variants sont à peu près identiques (voir paragraphe 2.1.7).

Les pics fondamentaux accessibles sont 002 et 004. Compte-tenu de la proximité de paramètres de mailles entre MnPt et Pt, les pics se superposent. Leur proximité est suffisante pour qu'un ajustement basé sur la somme de deux pics soit imprécis. La technique retenue est de mesurer l'intégrale des deux pics, et de retrancher à cette valeur la part attribuable au platine seul, selon la technique exposée au paragraphe précédent. Les autres pics étudiés ont été intégrés par ajustement aux moindres carrés à un modèle de profil de pic également fourni au paragraphe 2.1.7, et dont les ajustements peuvent être observés sur la figure 2.29.

Lorsque nous mesurons l'intensité des pics 102, 103, etc., nous ne mesurons que l'intensité provenant du jeu de variants orienté pour diffracter dans la direction étudiée. Le deuxième jeu de variants diffracte quant à lui dans une direction à  $\pi/2$  de la première direction. C'est donc un paramètre d'ordre partiel qui est mesuré, correspondant à un seul jeu de variants. La prise en compte des deux intensités conduit à multiplier le paramètre d'ordre issu du calcul par  $\sqrt{2}$ .

## B.4 Cas des couches à axe $c$ perpendiculaire

Dans le cas du variant à axe  $c$  perpendiculaire, la mesure du volume intégré des pics de surstructure est plus simple que dans le cas planaire. En effet, les pics considérés sont de type  $00l$ . D'une part, ces pics se mesurent dans la même configuration que les pics fondamentaux ( $\omega = \theta$ ), qui sont de forte intensité et permettent un réglage aisé du diffractomètre. D'autre part, les axes principaux de la tache de diffraction sont les directions  $q_{//}$  et  $q_{\perp}$  qui correspondent directement aux angles  $\omega$  et  $\theta$  (seulement localement pour le premier). Enfin, ces pics se mesurent à une incidence moyenne, alors que le pic de plus forte intensité caractéristique des variants planaires, noté 102, était mesuré à faible incidence, ce qui causait des incertitudes pour l'évaluation du volume irradié et pour la mesure de son intensité intégrée.

Cependant, le rapport  $c/a$  étant plus petit, les seuls pics fondamentaux accessibles avec la longueur d'onde utilisée sont 002 et 222. Le calcul du facteur de Debye-Waller à partir de ces deux pics doit alors reposer sur l'hypothèse que ce facteur est isotrope, ce qui n'est pas toujours le cas. D'autre part, la position de la raie 222 oblige à une rotation de l'échantillon dans son plan. Les conditions d'éclairement peuvent ne pas être les mêmes et cela peut avoir une influence sur l'intensité mesurée sans que l'on puisse quantifier cette différence. Une autre possibilité consiste, dans le cas des raies fondamentales, à utiliser le facteur de Debye-Waller mesuré sur les raies de surstructure et dont la valeur peut être extraite comme dans le cas planaire sur la figure 2.30. C'est cette méthode que nous avons retenue.



# C

## Conventions

Dans ce document, nous avons retenu le Système international d’unités [195]. Plus particulièrement nous suivons, parmi les possibilités compatibles avec le SI, l’usage recommandé par l’Association internationale de géomagnétisme et d’aéronomie [196]. Ainsi, nous présentons l’intensité du champ magnétique en termes de densité de champ magnétique créée dans le vide, c’est-à-dire en unités de  $\mu_0 H$ . Nous le notons  $B$ .

D’autre part, le degré Celsius est un nom spécial de l’unité Kelvin que l’on peut utiliser par souci de commodité. C’est le choix qui a été fait dans ce manuscrit, lorsque les températures ainsi exprimées se trouvent entre 0 °C et 600 °C.

Les structures utilisées sont nommées conformément à la notation Strukturbericht. Les équivalences de notations sont fournies à la table C.1.

type de structure	Strukturbericht	symbole de Pearson [197]	groupe d’espace [191]	
AuCu <sub>3</sub>	L1 <sub>2</sub>	cP4	Pm3m	221
AuCu	L1 <sub>0</sub>	tP4	P4/mmm	123

TAB. C.1 – Notation des types d’alliages utilisés.

Nous notons par commodité FeNi l’alliage de composition Fe<sub>81</sub>Ni<sub>19</sub>, aussi appelé *permalloy*.

Dans cet exposé, nous utilisons pour l’espace réciproque une base attachée au substrat de MgO. La directions [001] est la direction de croissance, normale au plan de la couche. Les directions [100] et [010] sont situées dans le plan de la couche. Cette notation a pour intérêt l’utilisation d’une seule base pour nommer les pics de diffraction de l’ensemble des cristallites observés. Lorsqu’il est fait référence à une direction particulière de la structure de MnPt, les lettres  $a$ ,  $b$  et  $c$  sont utilisées. L’axe  $c$  est selon la direction d’anisotropie de la structure L1<sub>0</sub>.

Dans le cas des angles mesurés dans le plan, nous posons par convention la direction [100] comme étant l’angle 0. La direction [010] correspond à l’angle  $\pi/2$ .



# Table des figures

1.1	Illustration intuitive d'un cycle d'hystérésis effectué sur une bicouche couplée. Le ferromagnétique est noté F, l'antiferromagnétique AF. $H_c$ est le champ coercitif, $H_e$ le champ de décalage, $H$ le champ appliqué et $M$ l'aimantation du matériau. . . . .	12
1.2	Types de défauts d'un antiferromagnétique. . . . .	13
1.3	Modèle de Mauri. . . . .	15
1.4	Modèle de Malozemoff. . . . .	16
1.5	Modèle de Nowak. . . . .	16
1.6	Modèle de Koon. . . . .	18
1.7	Diagramme de phase de l'alliage MnPt. . . . .	23
1.8	Structures L1 <sub>0</sub> et L1 <sub>2</sub> . . . . .	23
1.9	Diagramme de phase magnétique de MnPt. . . . .	25
2.1	Réseau réciproque de la structure L1 <sub>0</sub> . . . . .	32
2.2	Diagrammes de diffraction en vue plane et coupe transverse par diffraction d'électrons. . . . .	33
2.3	Diffraction en incidence rasante de MnPt en coin d'épaisseur. . . . .	35
2.4	Schéma interprétatif de la diffraction d'électrons en incidence rasante. . . . .	35
2.5	Position de l'échantillon dans le cas de la diffraction d'électrons en incidence rasante. . . . .	36
2.6	Image de microscopie à force atomique. . . . .	36
2.7	Structure colonnaire de MnPt vue en microscopie électronique à transmission, en champ sombre, pour deux températures de dépôt. . . . .	39
2.8	Champ sombre montrant un des variants à deux températures. . . . .	39
2.9	Répartition du variant perpendiculaire dans l'échantillon. . . . .	40
2.10	Variations de contraste à l'interface entre Pt et MnPt. . . . .	40
2.11	Structure colonnaire de MnPt vue en microscopie électronique à transmission à haute résolution. . . . .	41
2.12	Interface entre variants observée en coupe. . . . .	41
2.13	Interface entre variants observée en vue plane. . . . .	42
2.14	Croissance en colonnes et variants planaires. . . . .	42
2.15	Interface entre Pt et MnPt. . . . .	43
2.16	Défaut au sein d'un empilement de MnPt. . . . .	44
2.17	Défauts observés sur une large zone de MnPt. . . . .	45
2.18	Illustration d'une paroi d'antiphase. . . . .	45
2.19	Schéma de l'interface Fe/MnPt. . . . .	47

2.20	Diffraction d'électrons en incidence rasante de Fe/MnPt. . . . .	47
2.21	Caractéristiques de l'interface Fe/MnPt. . . . .	47
2.22	Observation d'un défaut à l'interface Fe/MnPt. . . . .	48
2.23	Localisation des dislocations à l'interface Fe/MnPt. . . . .	48
2.24	Comparaison de la population des variants : dispositif expérimental. . . . .	50
2.25	Comparaison de la population des variants. . . . .	50
2.26	diffraction des rayons x sur plusieurs codépôts. . . . .	53
2.27	Pics de diffraction 002 et 004 sur un codépôt à température ambiante. . . . .	54
2.28	Évolution des paramètres de maille des codépôts avec la température de dépôt. . . . .	54
2.29	Ajustements pour le calcul du paramètre d'ordre pour un échantillon déposé à température ambiante. . . . .	56
2.30	Calcul du paramètre d'ordre pour un échantillon déposé à température intermédiaire. . . . .	57
2.31	Cycle d'hystérésis de Fe/MnPt pour un petit désaccord angulaire. . . . .	59
2.32	Différents cycles obtenus sur Fe/MnPt. . . . .	60
2.33	Champs coercitifs pour Fe/MnPt avant et après recuit sous champ. . . . .	61
2.34	Champs de décalage pour Fe/MnPt avant et après recuit sous champ. . . . .	61
2.35	Différentes anisotropies en jeu dans les bicouches Fe/MnPt. . . . .	62
2.36	Cycles d'hystérésis d'un échantillon FeNi/MnPt. . . . .	63
2.37	Différents cycles obtenus sur FeNi/MnPt. . . . .	64
2.38	Différents cycles obtenus sur FeNi/MnPt. . . . .	65
2.39	Anisotropie induite dans FeNi/MnPt. . . . .	66
2.40	Champs coercitifs pour FeNi/MnPt avant et après recuit sous champ. . . . .	66
2.41	Champs de décalage pour FeNi/MnPt avant et après recuit sous champ. . . . .	67
2.42	MFM sous champ : schéma du dispositif expérimental. . . . .	69
2.43	MFM sous champ : observations au champ coercitif. . . . .	70
2.44	MFM sous champ : cycles d'hystérésis correspondants. . . . .	71
2.45	MFM sous champ : effacement de domaines sous l'effet de la pointe. . . . .	72
2.46	Principe de la mesure de relaxation. . . . .	73
2.47	Mesure de relaxation. . . . .	73
2.48	Images MFM d'un échantillon de FeNi/Pt. . . . .	76
2.49	Images MFM topographiques et magnétiques d'un échantillon FeNi/MnPt. . . . .	77
2.50	Définition du système et des angles dans la modélisation des fluctuations observées sur l'image MFM. . . . .	77
2.51	Fonction de réponse du MFM à la bicouche. . . . .	81
2.52	Simulation numérique des fluctuations. . . . .	82
2.53	Effet d'un champ extérieur sur les fluctuations magnétiques dans le cas du système Fe/MnPt. . . . .	84
2.54	Fluctuations dans le cas du système FeNi/MnPt. . . . .	85
2.55	Définitions des angles utilisés dans le modèle. . . . .	85
2.56	Représentation polaire adoptée pour les simulations numériques. . . . .	87
2.57	Simulation de cycles pour un faible désaccord d'angle. . . . .	89
2.58	Évolution de l'aimantation rémanente et de l'aimantation à champ positif arbitraire. . . . .	90
2.59	Cycles d'hystérésis simulés pour un recuit [110]. . . . .	92
2.60	Processus de renversement simulés pour un recuit [110]. . . . .	93
2.61	Évolution simulée du champ de décalage. . . . .	94

2.62	Introduction d'un couplage entre les moments non-compensés du ferromagnétique et de l'antiferromagnétique. . . . .	96
2.63	Évolution angulaire du champ coercitif dans différentes situations d'anisotropie. . . . .	97
2.64	Évolution angulaire du champ coercitif obtenu par simulation dans un cas simulant le permalloy. . . . .	100
3.1	Illustration de média d'enregistrement magnétique planaire et perpendiculaire. . . . .	102
3.2	Observation en diffraction d'électrons en incidence rasante de la croissance de MnPt, pour deux températures de dépôt. . . . .	104
3.3	Évolution de la largeur des pics d'une structure couche par couche en fonction de la température. . . . .	106
3.4	Mise en ordre préférentielle selon la direction perpendiculaire d'un échantillon MnPt déposé couche par couche. . . . .	107
3.5	Champ sombre sur la tache 001 d'un échantillon MnPt déposé couche par couche. . . . .	107
3.6	Image en haute résolution d'une couche de MnPt déposée en couche par couche. . . . .	108
3.7	Mesures $\theta - 2\theta$ faites sur des échantillons MnPt déposés couche par couche. . . . .	109
3.8	diffraction des rayons x sur un échantillon de MnPt avant et après recuit. . . . .	110
3.9	diffraction des rayons x sur un échantillon de FePd avant et après irradiation. . . . .	112
3.10	diffraction des rayons x sur un échantillon de MnPt avant et après irradiation. . . . .	113
4.1	Schéma de l'espace réciproque pour les mesures de neutrons effectuées. . . . .	117
4.2	Ajustements obtenus pour les mesures de diffraction de neutrons de l'échantillon de MnPt codéposé. . . . .	119
4.3	Courbes de diffraction de neutrons obtenues sur l'échantillon de MnPt déposé en couche par couches. . . . .	121
4.4	Évolution des paramètres de maille avec la température. . . . .	121
4.5	Évolution du volume et du rapport $c/a$ de la maille avec la température. . . . .	122
4.6	Évolution des largeurs des pics des échantillons à anisotropie perpendiculaire mesurés par diffraction de neutrons. . . . .	123
4.7	Absence de variants dans le plan dans l'échantillon étudié par diffraction de neutrons. . . . .	123
4.8	Signal magnétique et nucléaire, en fonction de la température. . . . .	124
4.9	Signal magnétique normalisé, en fonction de la température. . . . .	125
4.10	Évolution du signal de diffraction de neutrons et de distribution de taille de grains. . . . .	126
4.11	Température de Néel de l'alliage MnPt en fonction de sa composition. . . . .	127
A.1	Schéma du dispositif d'épitaxie. . . . .	134
A.2	Surface de platine reconstruit. . . . .	135
A.3	Schéma du diffractomètre à rayons x. . . . .	136
A.4	Construction d'Ewald. . . . .	137
A.5	Évolution de la température dans le four de recuit sous champ. . . . .	138
A.6	Illustration du dispositif d'irradiation. . . . .	138
B.1	Effet de la largeur de la fente arrière sur l'intensité mesurée du faisceau de rayons x. . . . .	141
B.2	Coefficient de correction tenant compte de la correction de l'effet de la fente arrière. . . . .	142

B.3	Profil $\omega$ d'un pic 001 d'un alliage déposé par couche par couche à 400 °C.	. . . 143
-----	--	-----------

# Liste des tableaux

1.1	Conditions de dépôt et résultats sur MnPt. . . . .	30
2.1	Propriétés thermodynamiques des alliages. . . . .	32
2.2	Propriétés thermodynamiques des éléments utilisés. . . . .	34
2.3	Position angulaire des pics de diffraction . . . . .	52
2.4	Paramètres de maille et ordre chimique pour les codépôts. . . . .	52
2.5	Récapitulatif des mécanismes de renversement de l'aimantation observés. . . . .	74
2.6	Constantes d'échange et d'anisotropie pour le fer et le permalloy utilisées pour les applications numériques. . . . .	80
3.1	Paramètre de maille des échantillons MnPt couche par couche en fonction de la température de dépôt. . . . .	104
3.2	Évolution de la largeur des domaines cohérents d'une structure couche par couche en fonction de la température. . . . .	105
3.3	Évolution du paramètre d'ordre à longue distance avec la température de dépôt. . . . .	108
3.4	Paramètre d'ordre des échantillons MnPt couche par couche en fonction de la température de recuit. . . . .	110
B.1	Valeurs numériques nécessaires pour le calcul des facteurs de structure. Le coefficient $b$ est exprimé en $\text{m}^2$ , les autres paramètres n'ont pas de dimension. . . . .	140
C.1	Notation des types d'alliages. . . . .	147





# Bibliographie

- [1] L. Néel. *Annales de physique*, 17 : 5, 1932. 11
- [2] W. P. Meiklejohn, C. P. Bean. New magnetic anisotropy. *Physical review*, 102 : 1413, juin 1956. 11
- [3] John R. Arthur. Molecular beam epitaxy. *Surface science*, 500 :189–217, mars 2002. 11
- [4] J. Nogués, J. Sort, S. Suriñach, J. S. Muñoz, M. D. Baró, J. F. Bobo, U. Lüders, E. Haanappel, M. R. Fitzsimmons, A. Hoffmann, J. W. Cai. Isothermal tuning of exchange bias using pulsed fields. *Applied physics letters*, 82(18) : 3044–3046, 5 mai 2003. 12, 18, 95
- [5] C. Mitsumata, A. Sakuma, K. Fukamichi. Influence of the spin structure on the exchange bias of antiferromagnetic, ferromagnetic bilayer. *IEEE Transactions on magnetics*, 39(5) : 2738–2740, septembre 2003. 13
- [6] C. Mitsumata, A. Sakuma, K. Fukamichi. Mechanism of the exchange-bias field in ferromagnetic et antiferromagnetic bilayers. *Physical review B*, 68 : 014437, 31 juillet 2003. 13
- [7] Jamal Ben Youssef, David Spenato, Henri Le Gall, Jean Ostoréro. Large exchange bias in interdiffused NiFe/Mn bilayers. *Journal of applied physics*, 91(10) : 7239–7241, 15 mai 2002. 13, 14
- [8] S. Dubourg, J. F. Bobo. Correlation between coercivity, exchange bias in epitaxial NiO-Co (110) bilayers. *Journal of applied physics*, 91(10) : 7757–7759, 15 mai 1999. 13
- [9] Z. Qian, J. M. Sivertsen, J. H. Judy. Magnetic behavior of NiFe/NiO bilayers. *Journal of applied physics*, 83(11) : 6825–6828, 1998. 13
- [10] T. J. Moran, J. Nogues, D. Lederman, I. K. Schuller. Perpendicular coupling at Fe-FeF<sub>2</sub> interfaces. *Applied physics letters*, 72 : 617, 1998. 14, 17
- [11] S. Honda, M. Nawate, T. Norikane. Exchange intercation in MnPt/FeCo sputtered multilayers. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 220 :85–95, 2000. 14, 24, 30
- [12] Jing-guo Hu, Guo-jun Jin et Yu-qiang Maa. Thickness dependence of exchange bias, coercivity in a ferromagnetic layer coupled with an antiferromagnetic layer. *Journal of applied physics*, 94(4) : 2529–2533, 15 aout 2003. 14, 16
- [13] R. Röhlberger, H. Thomas, K. Schlage, O. Leupold, R. Rüffer. Imaging the magnetic spin structure of exchange-coupled thin films. *Physical review letters*, 89(23) : 237201, 2 décembre 2002. 14, 96
- [14] M. D. Stiles, R. D. McMichael. Coercivity in exchange-bias bilayers. *Physical review B*, 63 : 064405, 2001. 14

- [15] F. Offi, W. Kuch et J. Kirschner. Structural, magnetic properties of  $Fe_xMn_{1-x}$  thin films on Cu(001), on Co/Cu(001). *Physical review B*, 66 : 064419, 2002. 14
- [16] Y. J. Tang, B. Roos, T. Mewes, S. O. Demokritov, B. Hillebrands, Y. J. Wang. Enhanced coercivity of exchange-bias Fe/MnPd bilayers. *Applied physics letters*, 75(5) : 707–709, 2 aout 1999. 14
- [17] Y. J. Tang, B. F. P. Roos, T. Mewes, A. R. Frank, M. Rickart, M. Bauer, S. O. Demokritov, B. Hillebrands, X. Zhou, B. Q. Liang, X. Chen, W. S. Zhan. Structure, magnetic properties of exchange-biased polycrystalline Fe/MnPd bilayers. *Physical review B*, 62(13) : 8654–8657, 1 octobre 2000. 14
- [18] W. J. Antel Jr., F. Perjeru, G. R. Harp. Spin structure at the interface of exchange biased FeMn/Co bilayers. *Physical review letters*, 83(7) : 1439–1442, 16 aout 1999. 14, 20
- [19] Ch. Binek, A. Hochstrat, W. Kleemann. Exchange bias in a generalized Meiklejohn-Bean approach. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 234 : 353–358, 2001. 14
- [20] M. Ali, C. H. Marrows, B. J. Hickey. Onset of exchange bias in ultrathin antiferromagnetic layers. *Physical review B*, 67 : 172405, 16 mai 2003. 14, 19
- [21] Z. Y. Liu, S. Adenwalla. Variation of domain formation in a 15 nm NiFe layer exchange coupled with NiO layers of different thicknesses. *Applied physics letters*, 82(13) : 2106, 2003. 14
- [22] M. S. Lund, W. A. A. Macedo, Kai Liu, J. Nogués, Ivan K. Schuller, C. Leighton. Effect of anisotropy on the critical antiferromagnet thickness in exchange-biased bilayers. *Physical review B*, 66 : 054422, 2002. 14
- [23] Y. Ozaki, K. Shimoyama, T. Kato, S. Iwata, S. Tsunashima. Exchange anisotropy in MBE grown  $MnPt/NiFe$  bilayers. *IEEE Transactions on magnetics*, 36(5) : 2888–2891, 2000. 14, 30
- [24] Z. T. Diao, M. Ueno, A. Kojo, H. Nishida, F. Hikami, T. Sawasaki, K. Tabuchi, K. Kamei. Exchange coupling, stability of PtMn-based spin valves. *IEEE Transactions on magnetics*, 36(5) : 2632–2634, septembre 2000. 14, 26, 27
- [25] Young Keun Kim, Seong-Rae Lee, Se Ahn Song, Gyeong-Su Park, Hyuck Soo Yang et K.-I. Min. Magnetoresistance, interlayer diffusion in PtMn spin valves upon postdeposition annealing. *Journal of applied physics*, 89(11) : 6907–6909, 1<sup>er</sup> juin 2001. 14, 26, 28, 30
- [26] M. Rickart, A. Guedes, J. Ventura, J. B. Sousa, P. P. Freitas. Blocking temperature in exchange coupled MnPt / CoFe bilayers et synthetic antiferromagnets. *Journal of applied physics*, 97 : 10K110, 2005. 14, 28
- [27] H. Sang, Y. W. Du, C. L. Chien. Exchange coupling in  $Fe_{50}Mn_{50}/Ni_{81}Fe_{19}$  bilayer : Dependence on antiferromagnetic layer thickness. *Journal of applied physics*, 85(8) : 4928–4930, 15 avril 1999. 14
- [28] T. Ambrose, C. L. Chien. Finite-size effects, uncompensated magnetization in thin antiferromagnetic CoO layers. *Physical review letters*, 76 : 1743, 1996. 14
- [29] H. Xi, R.M. White. *Physical review B*, 64 : 184416, 2001. 14
- [30] D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, E. Kay. Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate. *Applied physics letters*, 62(7) : 3047–3049, 1987. 15

- [31] A. P. Malozemoff. Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. *Physical review B*, 35 : 3679, 1987. 15
- [32] H. Xi, Robert M. White. A theoretical study of interfacial spin flop in exchange-coupled bilayers. *IEEE Transactions on magnetics*, 36(5), septembre 2000. 15
- [33] R. L. Stamps. Mechanisms of exchange bias : partial wall pinning, fluctuations. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 242-245(1) : 139–145, 2002. 16
- [34] Joo-Von Kim, R. L. Stamps. Hysteresis from antiferromagnet domain-wall processes in exchange-biased systems : magnetic defects, thermal effects. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 286 : 233–237, 2005. 16
- [35] Joo-Von Kim, R. L. Stamps. Defect-modified exchange bias. *Applied physics letters*, 79(17) : 2785–2787, 22 octobre 2001. 16
- [36] U. Nowak, K. D. Usadel, J. Keller, P. Miltenyi, B. Beschoten et G. Güntherodt. Domain state model for exchange bias. I. Theory. *Physical review B*, 66 : 014430, 17 juillet 2002. 16, 94
- [37] C. L. Chien, V. S. Gornakov, V. I. Nikitenko, A. J. Shapiro, R. D. Shull. Hybrid domain walls, antiferromagnetic domains in exchange-coupled ferromagnet/antiferromagnet bilayers. *Physical review B*, 68 : 014418, 15 juillet 2003. 16, 21
- [38] J. Nogues, D. Lederman, T. J. Moran, Ivan K. Schuller. Positive Exchange Bias in FeF<sub>2</sub>-Fe Bilayers. *Physical review letters*, 76(24) : 4624–4627, 1996. 17
- [39] K. Takano, R. H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao, G. Thomas. Role of interfacial uncompensated antiferromagnetic spins in unidirectional anisotropy in *Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/CoO* bilayers (invited). *Journal of applied physics*, 83 : 6888, 1988. 17
- [40] T. C. Schulthess, W. H. Butler. Consequences of spin-flop coupling in exchange biased films. *Physical review letters*, 91(20) : 4516–4519, 16 novembre 1998. 17, 94, 100
- [41] R. E. Camley, B. V. McGrath, R. J. Astalos, R. L. Stamps, Joo-Von Kim et Leonard Wee. Antiferromagnetic thickness dependance of exchange biasing. *Journal of vacuum science, technology A*, 17(4), juillet 1999. 17
- [42] C. H. Marrows. Three-dimensional exchange bias in Co/Pd<sub>N</sub>/FeMn. *Physical review B*, 68 : 012405, 14 juillet 2003. 17, 97
- [43] M. Kiwi, J. Mejia-Lopez, R.D. Portugal, R. Ramirez. Exchange bias model for *Fe/FeF<sub>2</sub>* : role of domains in the ferromagnet. *Europhysics letters*, 48 : 573, 1996. 18
- [44] D. S. Deng, X. F. jin, Ruibao Tao. Exchange bias in ferromagnetic/compensated antiferromagnetic bilayers. *Physical review B*, 65 : 172402, juin 2002. 18
- [45] A. Thiaville, A. Fert. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 113 : 161, 1992. 18
- [46] A. N. Bogdanov, U. K. Rossler, K.-H. Muller. Induced anisotropy, reorientation transitions, domains in magnetic films, multilayers. *Physica status solidi*, 189(2) : 397–401, 2002. 18
- [47] T. Mewes, B. Hillebrands, R. L. Stamps. Induced fourfold anisotropy, bias in compensated NiFeOFeMn double layers. *Physical review B*, 68 : 184418, 2003. 18, 99
- [48] Michael J. Pechan et Douglas Bennett, Nienchtze Teng, C. Leighton, J. Nogués, Ivan K. Schuller. Induced anisotropy, positive exchange bias : A temperature, angular, cooling field study by ferromagnetic resonance. *Physical review B*, 65 : 064410, 15 janvier 2002. 18

- [49] Y. J. Tang, X. Zhou, X. Chen, B. Q. Liang, W. S. Zhan. Exchange anisotropy of epitaxial Fe/MnPd bilayers. *Journal of applied physics*, 63 : 2054–2057, 15 aout 2000. 18
- [50] Geoffroy W. Anderson, Yiming Huai, Mahendra Pakala. Spin-valve thermal stability : The effect of different antiferromagnets. *Journal of applied physics*, 87(9) : 5726–5728, 1<sup>er</sup> mai 2000. 19, 26, 27, 30
- [51] J. Nogues, D. Lederman, T. J. Moran, Ivan K. Schuller, K. V. Rao. Large exchange bias, its connection to interface structure in Fe<sub>2</sub>-Fe bilayers. *Applied physics letters*, 68(22) : 3186–3188, 1996. 19, 43, 58
- [52] J. Nogués, Ivan K. Schuller. Exchange bias. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 192(2) : 203–232, 1999. 19
- [53] P. J. van der Zaag, Y. Ijiri, J. A. Borchers, L. F. Feiner, R. M. Wolf, J. M. Gaines, R. W. Erwin, M. A. Verheijen. Recent studies in thermal activation, spin waves. *Physical review letters*, 84(26) : 6102–6105, 2000. 19
- [54] E. Fulcomer, S. H. Charap. Temperature, frequency dependence of exchange anisotropy effects in oxidized NiFe films. *Journal of applied physics*, 43 : 4184, 1972. 19
- [55] Haiwen Xi, Robert M. White. Theory of the blocking temperature in polycrystalline exchange biased bilayers based on a thermal fluctuation model. *Journal of applied physics*, 94(9) : 5850–5853, 31 octobre 2003. 19
- [56] Luc Thomas, Béatrice Negulescu. Metastable antiferromagnetic domain configurations in exchange biased bilayers. *Journal of applied physics*, 93(10) : 8606–8608, 15 mai 2003. 19
- [57] S. Demirtas, A. R. Koymen. Thickness dependence of oscillatory exchange bias. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 286 : 238–242, 2005. 19
- [58] J. Keller, P. Miltényi, B. Beschoten, G. Güntherodt, U. Nowak, K. D. Usadel. Domain state model for exchange bias. II. Experiments. *Physical review B*, 66 : 014431, 17 juillet 2002. 19
- [59] C. Leighton, M. Song, J. Nogués, M. Cyrille, Ivan K. Schuller. Using magnetoresistance to probe reversal asymmetry in exchange biased bilayers. *Journal of applied physics*, 88(1) : 344–347, 2000. 20, 57, 72, 98
- [60] A. Punnoose, E. H. Morales, Y. Wang, D. Lederman, M. S. Seehra. Hysteretic de ferromagnetic resonance as a probe for coercivity, exchange bias, loop asymmetry. *Journal of applied physics*, 93(1) : 771–773, 1<sup>er</sup> janvier 2003. 20, 30
- [61] R. L. Compton, Michael J. Pechan, S. Maat, Eric E. Fullerton. Probing the magnetic transitions in exchange-biased FePt<sub>3</sub>/Fe bilayers. *Physical review B*, 66 : 054411, 2002. 20
- [62] K.-U. Barholz, R. Mattheis. Determination of the distribution of both exchange bias field strength, direction in ferromagnet/antiferromagnet systems. *Journal of applied physics*, 91(10) : 7224–7226, 15 mai 2002. 20
- [63] B. H. Miller, E. Dan Dalberg. Use of the anisotropic magnetoresistance to measure exchange anisotropy in Co/CoO bilayers. *Applied physics letters*, 69(25) : 3992–5002, décembre 1996. 20

- [64] B. H. Miller, E. Dan Dahlberg. Measurement of the exchange anisotropy in CoO/CoO bilayers using the anisotropic magnetoresistance. *Journal of applied physics*, 81(8) : 5002, 15 avril 1997. 20
- [65] Chunhong Hou, Jian Chen, Mark T. Kief, Zheng Gao, Sining Mao, Taras Pokhil. Dispersion of the pinning field direction of a ferromagnet/antiferromagnet coupled system. *Applied physics letters*, 78(2) : 237–239, 8 janvier 2001. 20
- [66] D. Berling, S. Zabrocki, R. Stephan, G. Garreau, J. L. Bubendorff, A. Mehdaoui, D. Bolmont, P. Wetzel, C. Pirri, G. Gewinner. Accurate measurement of the in-plane magnetic anisotropy energy function  $E_a(\theta)$  in ultrathin films by magneto-optics. *Journal of magnetism, magnetic materials*, sous presse, 2005. 20
- [67] H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A.T. Young, M. Carey, J. Stöhr. Correlation between exchange bias, pinned interfacial spins. *Physical review letters*, 91(1) : 017203, 4 juillet 2003. 20, 30, 94
- [68] P. Blomqvist, Kannan M. Krishnan, H. Ohldag. Direct Imaging of Asymmetric Magnetization Reversal in Exchange-Biased Fe/MnPd Bilayers by X-Ray Photoemission Electron Microscopy. *Physical review letters*, 94 : 107203–1–107203–4, 18 mars 2005. 21, 68, 74
- [69] F. Offi, W. Kuch, L. I. Chelaru, M. Kotsugi, J. Kirschner. Local exchange bias observed by photoemission microscopy. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 261(2), 2003. 21
- [70] A. Scholl, F. Nolting, J. Stohr, T. Regan, J. Lüning, J. W. Seo, J.-P. Locquet, J. Fompeyrine, S. Anders, H. Ohldag, H. A. Padmore. Exploring the microscopic origin of exchange bias with photoelectron emission microscopy. *Journal of Physique D*, 89(11) : 7266–7268, 1<sup>er</sup> juin 2001. 21
- [71] O. Zaharko, P. M. Oppeneer, H. Grimmer, M. Horisberger, H.-Ch. Mertins, D. Abramsohn, F. Schöfers, A. Bill, H.-B. Braun. Exchange coupling in Fe/NiO/Co film studied by soft X-ray resonant magnetic scattering. *Physical review B*, 66 : 134406, 2002. 21
- [72] M. Cartier, S. Auffret, Y. Samson, P. Bayle-Guillemaud, B. Dieny. Magnetic domain configurations in exchange-coupled NiO/Co bilayers. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 223 : 63–72, 2001. 21
- [73] O. de Haasa, R. Schäfer, L. Schultz, K.-U. Barholz, R. Mattheis. Rotational magnetization processes in exchange biased  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  bilayers. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 260 : 380–385, 2003. 21
- [74] L. Wee, R. L. Stamps, L. Malkinski, Z. Celinski, D. Skrzypek. Thermal training of exchange bias in epitaxial Fe/KNiF<sub>3</sub>. *Physical review B*, 69 : 134425, 2004. 21
- [75] Y. G. Wang, A. K. Petford-Long, T. Hughes, H. Laidler, K. O’Grady, M. T. Kief. Magnetisation reversal of the ferromagnetic layer in *IrMn/CoFe* bilayer films. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 242-245 : 1081–1084, 2002. 21
- [76] R. E. Dunin-Borkowski, M. R. McCartney, B. Kardynal, S. S. P. Parkin et M. R. Scheinfein, D. J. Smith. Off-axis electron holography of patterned magnetic nanostructures. *Journal of Microscopy*, 200(3) : 187, décembre 2000. 21
- [77] V. Skumryev, S. Stoyanov, Yong Zhang, G. Hadjipanayis, D. Givord et J. Nogués. Beating the superparamagnetic limit with exchange bias. *Nature*, 423 : 850–853, 2003. 21

- [78] Kari Brun, A. Kjekshus, W. B. Pearson. Equiatomic transition metal alloys of manganese. *Philosophical magazine*, 10 :291–299, 1964. 21, 22
- [79] R. F. C. Farrow, R. F. Marks, S. Gider, A. C. Marley, S. S. P. Parkin.  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  : A new exchange bias material for permalloy. *Journal of applied physics*, 81(8) : 4988, avril 1997. 21, 24, 30, 99
- [80] T. Kume, Y. Sugiyama, T. Kato, S. Iwata, S. Tsunashima. Exchange anisotropy of (001) oriented  $\text{Mn}_{1-x}\text{Pt}_x\text{NiFe}$  epitaxial films. *Journal of applied physics*, 96(10) : 6599–6601, 15 mai 2003. 22
- [81] Haiwen Xi, Bo Bian, David E. Laughlin, Robert M. White. Exchange biasing in sputtered NiFe/PtMn bilayers. *Journal of applied physics*, 87(9) : 4918–4919, 1<sup>er</sup> mai 2000. 22
- [82] A. Borgschulte, D. Menzel, T. Widmer, H. Bremers, U. Barkow, J. Schoenes. Epitaxial growth, magnetic properties of  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  ( $x \leq 0.38$ ) thin films on (001)- $\text{SrTiO}_3$  substrates. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 205(2) : 155–161, 1999. 22
- [83] S. J. Pickart, R. Nathans. Alloys of the first transition series with Pd, Pt. *Journal of applied physics*, 33(3) : 1336, 1962. 22
- [84] B. Antonini, F. Lucari, F. Menzinger, A. Paoletti. Magnetization distribution in Ferromagnetic  $\text{MnPt}_3$  by a polarized-neutron investigation. *Physical review*, 187(2) : 611–618, 1969. 22
- [85] Kurt W. Wierman, Roger D. Kirby. Long-range order, magnetic properties of  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  thin films. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 154 : 12–16, 1996. 22
- [86] A. Borgschulte, F. J. Nieber, D. Menzel, J. Schoenes. Angle-resolved ultraviolet photoemission investigation of the electronic structure of ferromagnetic  $\text{MnPt}_3$ . *Physical review B*, 62(12) : 7824–7832, 15 septembre 2000. 22
- [87] S. Gallego, L. Chico, M. C. Muñoz. Electronic surface configuration of the  $\text{Pt}_3\text{Mn}(111)$ , layered  $2 \times 2$  Pt/ $\text{Pt}_3\text{Mn}(111)$  compounds. *Physical review B*, 57 : 4863, 1998. 22
- [88] Thaddeus B. Massalski. *Binary alloy phase diagrams*, volume 2, pages 1575, 1579. American society for metals, 1986. 23
- [89] Serafin Fraga, Jacek Karwowski, K. M. S. Saxena. *Handbook of atomic data*. Elsevier, 1976. 22
- [90] P. Villars, L. D. Calvert. *Pearson's handbook of crystallographic data for intermetallic phases*, volume 3, page 2725. American society for metals, 1985. 22
- [91] C. S. Severin, C. W. Chen. Ferromagnetic behavior of disordered  $\text{MnPt}$  films produced by rf sputtering. *Journal of applied physics*, 49(3) : 1693–1695, mars 1978. 22
- [92] C. W. Chen, R. W. Buttry. Magnetic properties of  $\text{MnPt}$ ,  $\text{CoPt}$ . *AIP Conference proceedings*, 24 : 437–438, 1974. 22
- [93] Peter F. Ladwig, Y. Austin Chang, Eric S. Linville, Augusto Morrone, Jenny Gao, Bharat B. Pant, Alan E. Schlutz, Sining Mao. Paramagnetic to antiferromagnetic phase transformation in sputter deposited Pt-Mn thin films. *Journal of applied physics*, 94(2) : 979–987, 15 juillet 2003. 22, 28
- [94] E. Krén, G. Kádár, L. Pál, J. Sólyom, P. Szabó, T. Tarnóczy. Magnetic Structures, Exchange Interactions in the Mn-Pt System. *Physical review*, 171 : 574, 1968. 22, 24, 25, 115, 118, 125



- [95] Kannan M. Krishnan, C. Nelson, C. J. Echer, R. F. C. Farrow, R. F. Marks et A. Kellock. Exchange biasing of permalloy films by  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}$  : Role of composition, microstructure. *Journal of applied physics*, 83(11) : 6810–6812, 1<sup>er</sup> juin 1998. 24, 30
- [96] Erie H. Morales, Y. Wang, D. Lederman, A. J. Kellock, M. J. Carey. Interdiffusion, exchange bias in the  $\text{Mn}_x\text{Pt}_{1-x}/\text{Co}$  system. *Journal of applied physics*, 93(8) : 4729–4733, 15 avril 2003. 24, 30
- [97] R. Y. Umetsu, K. Fukamichi. Concentration dependance of magnetic, electrical properties of gap-type antiferromagnetic MnPt alloys. *Journal of applied physics*, 91(10) : 8873–8875, 15 mai 2002. 24, 30, 125, 127
- [98] C. S. Severin, C. W. Chen, C. Stassis. Neutron-diffraction study of the magnetic structure of MnPt alloys. *Journal of applied physics*, 50(6), juin 1979. 24
- [99] A. F. Andersen, A. Kjekshus, R. Møllerud, W. B. Pearson. *Philosophical magazine*, 11 : 1245, 1965. 24
- [100] T. Lin, D. Mauri, N. Staud, C. Hwang, J. K. Howard, G. L. Gorman. *Applied physics letters*, 65 : 1183, 1994. 24
- [101] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit et D. Mauri. Exchange-biased spin valves for magnetic recording. *IEEE Transactions on magnetics*, 32 : 3165, 1996. 24
- [102] M. Lederman. Performance of metallic antiferromagnets for use in spin-valve read sensors. *IEEE Transactions on magnetics*, 35(2) : 794–799, mars 1999. 25
- [103] Geoffroy W. Anderson, Yiming Huai, Mahendra Pakala. Spin valves exchange biased IrMn/PtMn laminated antiferromagnets. *Journal of applied physics*, 87(9) : 4924–4926, 1<sup>er</sup> mai 2000. 25
- [104] Savas Gider, Lydia Baril, Daniele Mauri. Kinetics of thermal decay in NiMn, PtMn spin valve devices. *IEEE Transactions on magnetics*, 37(4) : 1704–1706, juillet 2001. 26
- [105] Shiva Prakash, Katalin Pentek, Yingbo Zhang. reliability of PtMn-based spin valves. *IEEE Transactions on magnetics*, 37(3) : 1123–1131, 3 mai 2001. 26
- [106] Matthew. J. Carey, N. Smith, B. A. Gurney, J. R. Childress, T. Lin. Thermally assisted decay of pinning in polycrystalline exchange biased systems (invited). *Journal of applied physics*, 89(11) : 6580, juin 2001. 26
- [107] Stephen Cool, Heather Brown, Richard Michel. Thermal degradation of PtMn-pinned top spin valves. *IEEE Transactions on magnetics*, 36(5) : 2954–2956, septembre 2000. 27, 30
- [108] Geoffroy W. Anderson, Mahendra Pakala, Yiming Huai. Spin-valve thermal stability : interdiffusion versus exchange biasing. *IEEE Transactions on magnetics*, 36(5) : 2605–2607, septembre 2000. 27
- [109] Sinig Mao, Zhijun Yang, Zheng Gao, Dehua Han, Taras Pokhil. Time dependant magnetism of exchange bias based spin valves. *IEEE Transactions on magnetics*, 36(5) : 3056–3058, septembre 2000. 27, 28
- [110] Sinig Mao, Zheng Gao. Characterization of magnetic, thermal stability of PtMn spin valves. *IEEE Transactions on magnetics*, 36(5) : 2860–2863, septembre 2000. 27
- [111] M. Rickart, A. Guedes, N. Franco, N. P. Barradas, P. Diaz, M. MacKenzie, J. N. Chapman, P. P. Freitas. Exchange bias in ordered antiferromagnets by rapid thermal anneal without magnetic field. *Journal of Physics D*, 38 : 2151–2155, 2005. 27, 30

- [112] Masamichi Saito, Naoya Hasegawa, Kenichi Tanaka, Yosuke Ide, Fumihito Koike, , Toshihiro Kuriyama. PtMn spin valve with synthetic ferrimagnet free, pinned layers. *Journal of applied physics*, 87(9) : 6974–6976, 1<sup>er</sup> mai 2000. 28, 30
- [113] Chih-Huang Lai, C. H. Yang, Y. J. Wang, H. Niu, Chunhong Hou, S. Mao. Enhancement of exchange field, reduction of GMR in PtMn-based spin valves by ion irradiation. *Journal of applied physics*, 91(10) : 7101–7103, 15 mai 2002. 28
- [114] Young-Suk Choi, Amanda Petford-Long, Roger C. C. Ward. Epitaxial PtMn / NiFe exchange-biased bilayers containing directly deposited ordered PtMn. *Journal of applied physics*, 97 : 10C512–1, 2005. 30
- [115] J. C. A. Huang, C. C. Yu, C. H. Lee. Biaxial exchange anisotropy in PtMn/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (110) bicrystal films. *Journal of applied physics*, 87(9) : 4921–4923, 2000. 30
- [116] J. Juraszek, J. Fassbender, S. Poppe, T. Mewes, B. Hillebrands, D. Engel, A. Kronenberger, A. Ehresmann, H. Schmoranzer. Tuning exchange bias, coercive fields in ferromagnet/antiferromagnet bilayers with ion irradiation. *Journal of applied physics*, 91(10) : 6896–6898, 15 mai 2002. 30
- [117] C. C. Yu, J. C. A. Huang, Y. D. Yao. Step surface induced unidirectional exchange anisotropy in PtMn/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> on Mo(001). *Journal of applied physics*, 91(10) : 7230–7232, 15 mai 2002. 30, 49
- [118] Chin Chung Yu, J. C. A. Huang, Yeong Der Yao. Exchange anisotropy in PtMn/Ni<sub>80</sub>/Fe<sub>20</sub>(110) quad-crystal films. *IEEE Transactions on magnetics*, 39(5) : 2741–2743, septembre 2003. 30
- [119] C. H. Yang, Chih-Huang Lai et S. Mao. Reversing exchange fields in CoFe/PtMn, CoFe/IrMn bilayers by carbon field irradiation. *Journal of applied physics*, 93(10) : 6596–6598, 15 mai 2003. 30
- [120] K. Nagasaka, L. Varga, Y. Shimizu, S. Eguchi, A. Tanaka. The temperature dependance of exchange bias anisotropy in ferromagnetic/PdPtMn bilayers. *Journal of applied physics*, 87(9) : 6433–6435, 1<sup>er</sup> mai 2000. 30
- [121] Taras Pokhil, Eric Linville, Sining Mao. Exchange anisotropy, micromagnetic properties of PtMn/NiFe bilayers. *Journal of applied physics*, 89(11) : 6588–6590, 1<sup>er</sup> juin 2001. 30
- [122] A. L. Roitburd. Equilibrium structures of epitaxial layers. *Physica Status Solidi A*, 32 : 329–339, 1978. 31, 49
- [123] N. Sridhar, J. M. Rickman, D. J. Srolovitz. Twinning in thin films I Elastic analysis. *Acta Materiala*, 44(10) : 4085–4096, 1996. 31
- [124] N. Sridhar, J. M. Rickman, D. J. Srolovitz. Twinning in thin films II Equilibrium microstructures. *Acta Materiala*, 44(10) : 4097–4113, 1996. 31
- [125] R. F. C. Farrow, R. F. Marks, M. F. Toney, S. David, A. J. Kellock, J. A. Borchers, K. V. O'Donovan, D. J. Smith. Spontaneous chemical ordering, exchange bias in epitaxial Mn<sub>0.52</sub>/Pd<sub>0.48</sub>//Fe(001) bilayers prepared at room temperature. *Applied physics letters*, 80(5) : 808–810, février 2002. 32
- [126] F. R. de Boer, R. Boom, W. C. M. Mattens, A. R. Miedema, A. K. Niessen. *Cohesion in metals*. North-Holland, 1988. 32, 34



- [127] P. Ravindran, R. Vidya, P. Vajeeston, A. Kjekshus, H. Fjellvag. Ground-and excited-state properties of inorganic solids from full-potential density-functional calculations. *Journal of solid-state chemistry*, 176 : 338–374, 2003. 32
- [128] H. P. J. Wijn, editor. *Magnetic properties of metals*, volume 19. Springer-Verlag, 1991. 32
- [129] David Halley. *Croissance, mise en ordre chimique et relaxation des contraintes épitaxiales dans des alliages FePd et FePt*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, décembre 2001. 33, 37, 44, 120, 134
- [130] P. Blomqvist, Kannan M. Krishnan, David E. McCready. Growth of exchange-biased MnPd/Fe bilayers. *Journal of applied physics*, 95(12) : 8019–8022, 15 juin 2004. 43
- [131] W. B. Pearson. *A handbook of lattice spacing, structures of metals et alloys*, volume 2, page 1077. Pergamon Press, 1967. 43, 52
- [132] M. Rao, W. A. Soffa. *Scripta Materialia*, 36(7) : 735, 1997. 44
- [133] Daniel S. LInehan, Eric P. Kvam, Lifang Hou, Mike McElfresh. Biaxially aligned (013) YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub>  films on vicinal (011) SrTiO<sub>3</sub>. *Supercond. sci. technol.*, 9 : 739–742, 1996. 49
- [134] Ovidiu Ersen. *Étude structurale et magnétique de couches minces anisotropes à base de cobalt ; étude par DAFS de la structure locale de couches épitaxiales*. Thèse de doctorat, Université. Louis Pasteur, Strasbourg, 18 décembre 2001. 51
- [135] J. C. Slonczewski. Determination of order parameter of L<sub>10</sub>-FePd nanoparticles by electron diffraction. *Journal of applied physics*, 97(8) : 84301–1–7, 2005. 55
- [136] Aurore Rudolf. *Étude par microscopie électronique à transmission d’un système magnétique couplé antiferro / ferromagnétique*. Université Joseph Fourier, 28 juin 2004. 55
- [137] Chih-Huang Lai, Yung-Hung Wang, Ching-Ray Chang, Jyh-Shinn Yang, Y. D. Yao. Exchange-bias-induced double-shifted magnetization curves in Co biaxial films. *Physical review B*, 64 : 094420, 13 aout 2001. 57, 81
- [138] C. Leighton, M. R. Fitzsimmons, P. Yashar, A. Hoffmann, J. Nogués, J. Dura, C. F. Majkrzak, Ivan K. Schuller. Two-stage magnetization reversal in exchange biased bilayers. *Physical review letters*, 86(19) : 4394–4397, 7 mai 2001. 57
- [139] M. R. Fitzsimmons, P. Yashar, C. Leighton, Ivan K. Schuller, J. Nogués, C. F. Majkrzak, J. A. Dura. Asymmetric magnetization reversal in exchange-biased hysteresis loops. *Physical review letters*, 84(17) : 3986–3989, 2000. 57, 74, 98
- [140] Julio Camarero, Jordi Sort, Axel Hoffmann, Jose Miguel García-Martín, Bernard Dieny, Rodolfo Miranda, Josep Nogués. Origin of the asymmetric magnetization reversal behavior in exchange-biased systems : competing anisotropies. *Physical review letters*, 95 : 057204, 29 juillet 2005. 58
- [141] E. Gu, J. A. C. Bland, C. Daboo, M. Gester, L. M. Brown, R. Ploessl, J. N. Chapman. Microscopic magnetization reversal processes, magnetic domain structure in epitaxial Fe/GaAs(001) films. *Physical review B*, 51(6) : 3596–3608, 18 février 1995. 68
- [142] H. Sato, W. Astrue. Checkboard domain pattern of single-crystal iron-film. *Journal of applied physics*, 33(10) : 2956–2957, octobre 1962. 68

- [143] A. Berger, U. Linke, H. P. Oepen. Symmetry-induced uniaxial anisotropy in ultrathin epitaxial cobalt films grown on Cu (1 1 13). *Physical review letters*, 68(6) : 839–842, 1992. 68
- [144] P. Krams, B. Hillebrands, G. Günterodt, H. P. Oepen. Magnetic anisotropies of ultrathin Co films on Cu (1 1 13) substrates. *Physical review B*, 49(5) : 3633–3636, 1994. 68
- [145] H. Sato, R. S. Toth, W. Astrue. Bitter patternson single-crystalthin films of iron, nickel. *Journal of applied physics*, 33(3) : 1113–1115, 18 février 1962. 68
- [146] M. R. Fitzimmons, C. Leighton, J. Nogués, A. Hoffmann, Kai Liu, C. F. Majkrzak, J. A. Dura, J. R. Groves, R. W. Springer, P. N. Arendt, V. Leiner, H. Lauter, , Ivan K. Schuller. Influence of in-plane crystalline quality of an antiferromagnet on perpendicular exchange coupling, exchange bias. *Physical review B*, 65 : 144418, 2002. 68, 72, 74
- [147] M. V. Rastei, M. Abes, J. P. Bucher, A. Dinia, V. Pierron-Bohnes. Field-dependent behavior of a magnetic force microscopy tip probed by means of high coercive nanomagnets. *Journal of applied physics*, 99 : 084316, 2004. 68
- [148] John Chapman. Exchange bias, ultrafast magnetization dynamics : from fundamentals processes to applications – Lorentz microscopy. *École d’été Nexbias/Ultrawitch*, 16 septembre 2004. 69
- [149] Fang Yi Kun, Zhu Ming Gang, Guo Yong Quan, Li Wei, Han Bao Shan. Magnetic microstructure of sintered Nd-Fe-B magnets made from casting strips. *Chinese Physics Letters*, 21(8) : 1685–1688, 2004. 74
- [150] Horst Hoffmann. Static wall coercive force in ferromagnetic thin films. *IEEE Transactions on magnetics*, 9(1) : 17–21, mars 1973. 74
- [151] H. Joisten, S. Lagnier, M. H. Vaudaine, L. Vieux-Rochaz, J. L. Porteseil. A magnetic force microscopy, Kerr effectr study of magnetic domains, cross-tie walls in magnetoresistive NiFe shapes. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 233 : 230–235, 2001. 74
- [152] H. Brückl, J. Schmalhonst, H. Boeve, G. Gieres, J. Wecker. Comparison of hard magnetic electrodes for magnetoelectronics by magnetic force microscopy. *Journal of applied physics*, 91(10) : 7029–7031, mai 2001. 74, 75
- [153] Ko Wei Lin, Fu Tai Lin, Yi Min Tzeng. X-ray photoelectron spectroscopy, magnetic force microscopy studies of ion-beam deposited Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Co-oxide bilayers. *IEEE Transactions on magnetics*, 41(2) : 927–929, février 2005. 74
- [154] Xiaomin Liu, Giovanni Zangari. Easy axis dispersion, microamgnetic structure of electrodeposited, hghigh moment Fe-Co-Ni films. *Journal of applied physics*, 90(10) : 5247–5253, novembre 2001. 74
- [155] A. Gentilsa, J. N. Chapman et G. Xiong, R. P. Cowburn. Variation of domain-wall structures, magnetization ripple spectra in permalloy films with controlled uniaxial anisotropy. *Journal of applied physics*, 98 : 053905, 7 septembre 2005. 75
- [156] U. Hartman. *The point-dipole approximation in magnetic force microscopy*. Thèse de doctorat, juin 1989. 79
- [157] P. J. A von Schendel, H. J. Huy , B. Stiefel, S. Martin, H.-S. Guntherodt. *A method for the calibration of magnetic microscopy tips*. Thèse de doctorat, 2000. 79

- [158] H. J. Mamin, D. Rugar, J. E. Stern, B. D. Terris, S. E. Lambert. Force microscopy of magnetization patterns in longitudinal recording media. *Applied physics letters*, 53(16) : 1563–1565, 17 octobre 1998. 79
- [159] M. Mansuripur. Computation of fields, forces in magnetic forces microscopy. *IEEE Transactions on magnetics*, 25(5) : 3467–3469, 1989. 81
- [160] Paul Bryant, S. Schultz, D. R. Fredkin. Modeling the behavior of the magnetic force microscope. *Journal of applied physics*, 56(8) : 5877–5879, 15 avril 1991. 81
- [161] U. Hartmann, T. Göddenhenrich, C. Heiden. Magnetic force microscopy : current status, future trends. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 101 : 263–270, 1991. 81
- [162] David W. Abraham, Alan McDonald. Theory of magnetic force microscope images. *Applied physics letters*, 56(12) : 1181–1183, 1990. 81
- [163] Haiwen Xi, Robert M. White. Coupling between two ferromagnetic layers separated by an antiferromagnetic layer. *Physical review B*, 62(6) : 3933–3940, 1<sup>er</sup> aout 2000. 91
- [164] M. Finazzi, P. Biagioni, A. Brambilla, L. Duò, F. Ciccacci. Disclinations in thin antiferromagnetic films on a ferromagnetic substrate. *Physical review B*, 72 : 024410–1–8, 2005. 94
- [165] D. E. Thomas. Precision Measurement of Crystal-Lattice Parameters. *Journal of Scientific Instruments*, 25(12) : 440–444, décembre 1948. 98
- [166] E. A. Owen, E. L. Yates. An X-ray investigation of pure iron-nickel alloys. Partie 4 : the variation of lattice-parameter with composition. *Proceedings of the Physical Society*, 49(3) : 315–322, 1<sup>er</sup> mai 1937. 98
- [167] François Cardarelli. *Scientific unit conversion*. Springer, 1996. 98
- [168] Richard M. Bozorth. *Ferromagnetism*, chapter 4, page 112. D. Van Nostrand, 1951. 99
- [169] S. Roy, M. R. Fitzsimmons, S. Park, M. Dorn, O. Petravic, Igor V. Roshchin, Zhi-Pan Li, X. Battlle, R. Morales, A. Misra, X. Zhang, K. Chesnel, J. B. Kortright, S. K. Shina, Ivan K. Schuller. Depth profile of uncompensated spins in an exchange bias system. *Physical review letters*, 95 : 047201, 22 juillet 2005. 100
- [170] S. Dubourg, J. F. Bobo, B. Warot, E. Snoeck, J. C. Ousset. Oscillatory angular dependence of exchange bias for epitaxial NiO-Co (001) bilayers. *Material Research Society Symposium Proceedings*, 674 : T1.6.1, 2001. 100
- [171] Marcel Lahmani, Claire Dupas, Philippe Houdy. *Les nanosciences : Nanotechnologies et nanophysique*. Belin, 2004. 101
- [172] V. Géhanoo, C. Revenant-Brizard, A. Marty, B. Gilles. Studies of epitaxial Fe<sub>0.5</sub>Pd<sub>0.5</sub> thin films by x-ray diffraction, polarizers fluorescence absorption spectroscopy. *Journal of applied physics*, 84(4) : 2316–2323, 15 aout 1998. 103, 111
- [173] Jürgen Fassbender et Daphiné Ravelosona, Yves Samson. Tailoring magnetism by light-ion irradiation. *Journal of Physics D*, 37 : R179–R196, 28 juillet 2004. 111
- [174] H. Bernas, J.-Ph. Attané, K.-H. Heinig, D. Halley, D. Ravelosona, A. Marty, P. Auric, C. Chappert, Y. Samson. Ordering intermetallic alloys by ion irradiation : away to tailor magnetic media. *Physical review letters*, 91(7) : 077203, 15 aout 2003. 111, 114
- [175] J. Chadwick. *Nature*, 129 : 312, 1932. 115
- [176] H. Von Hallban, P. Preiswerk. *Comptes-rendus de l'Académie des Sciences*, 203 : 73, 1936. 115

- [177] D. P. Mitchell, P. N. Powers. *Physical Review*, 50 :486, 1936. 115
- [178] C. G. Shull, J. Samuel Smart. Detection of antiferromagnetism by neutron diffraction. *Physical review*, 76 : 1256, 1949. 115
- [179] Laboratoire Léon Brillouin. *Experimental facilities*. CEA Saclay, bâtiment 563, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France, janvier 2003. 115
- [180] John Hopkinson. Magnetic, other physical properties of iron at a high temperature. *Philosophical transactions of the Royal Society*, pages 443–465, 1889. 124
- [181] H. Pfeiffer, W. Schüppel. Temperature dependence of the magnetization in fine particle systems , the Hopkinson effect. Application to barium ferrite powders. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 130(1-3) : 92–98, février 1994. 124
- [182] C. N. Chinmasamy et A. Narayanasamy, N. Ponpandian, R. Justin Joseyphus, B. Jeyadevan , K. Tohji, K. Chattopadhyay. Grain size effect on the Néel temperature, magnetic properties of nanocrystalline  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  spinel. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 238(2-3) : 281–287, janvier 2002. 124, 125
- [183] G. L. Squires. *Introduction to the theory of thermal neutron scattering*. 1978. 125
- [184] S. Maat, O. Hellwig , G. Zeltzer, Eric E. Fullerton, M. L. Crow, J. L. Robertson. Antiferromagnetic structure of  $\text{FePt}_3$  films studied by neutron scattering. *Physical review B*, 63 : 134426, 1<sup>er</sup> avril 2001. 125
- [185] F. Huang, G. J. Mankey, M. T. Kief, R. F. Willis. Finite-size scaling behavior of ferromagnetic thin films. *Journal of applied physics*, 73(10) : 6760–6762, 15 mai 1993. 125
- [186] J. P. Chen, C. M. Sorensen, K. J. Klabunde, G. C. Hadjipanayis, E. Devlin, A. Kostikas. Size-dependent magnetic properties of  $\text{MnFe}_2\text{O}_4$  fine particles synthesized by coprecipitation. *Physical review B*, 54(13) : 9288–9296, 1<sup>er</sup> octobre 1996. 125
- [187] G. Campillo, A. Berger, J. Osorio, J. E. Pearson, S. D. Bader, E. Baca, P. Prieto. Substrate dependence of magnetic properties of  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  films. *Journal of magnetism, magnetic materials*, 237(1) : 61–68, novembre 2001. 126
- [188] N. C. Koon. Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces. *Physical review letters*, 78(25) : 4865–4868, 23 juin 1997. 131
- [189] Véronique Géhanno. *Anisotropie magnétique perpendiculaire des couches minces épitaxiées d'alliages ordonnés FePd*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, octobre 1997. 134
- [190] Cyrille Beigné. Mémoire en vue de l'obtention du diplôme d'ingénieur du CNAM. 2004. 137
- [191] Theo Hahn. *International tables for crystallography*. International crystallographic union, 1996. 139, 147
- [192] M. Piecuch, L. Nevot. X-rays, neutron characterisation of multilayer systems. *Material Science forum*, 59-60 :117, 1990. 142
- [193] Committee on Data for Science, Technology. 1998. 143
- [194] U. W. Arndt, B. T. M. Willis. *Single crystal diffractometry*. Cambridge University Press, 1966. 144

- [195] Organisation intergouvernementale de la Convention du Mètre. *Le système international d'unités*. Bureau International des poids et mesures, Pavillon de Breteuil, 92312 Sèvres Cedex, France, 8 edition, 2006. 147
- [196] Bruce M. Moskowitz. *Global Earth physics : a handbook of physical constants – Fundamental physical constants, conversion factors*, pages 346–355. Thomas J. Ahrens, 1995. 147
- [197] W. B. Pearson. *A handbook of lattice spacing, structures of metals, alloys*, volume 1, pages 741–742. Pergamon press, 1958. 147

## Résumé

La croissance par épitaxie par jets moléculaires de bicouches MnPt/Pt (100) a été étudiée. L'alliage MnPt, de structure chimiquement ordonnée  $L1_0$ , a été élaboré par codépôt et par dépôt couche par couche. Le codépôt conduit à une structure bivariée d'axes d'anisotropie dans le plan de la couche. Le dépôt couche par couche conduit à une orientation préférentielle de l'axe d'anisotropie perpendiculaire à la couche. La structure magnétique de ces deux types de dépôts a été caractérisée. Des bicouches couplées Fe/MnPt et FeNi/MnPt ont été élaborées. En raison de la compétition entre anisotropies et du couplage d'échange, le comportement angulaire des propriétés magnétiques de la couche ferromagnétique (champs coercitif et d'échange) montre une évolution complexe et une anisotropie induite. Un modèle d'énergie totale a été utilisé pour interpréter ces données expérimentales. Les mécanismes de renversement de l'aimantation ont été mis en évidence par microscopie à force magnétique sous champ. À petite échelle, la compétition entre anisotropie conduit à l'apparition d'ondulations de l'aimantation. Ces dernières ont été observées et interprétées à l'aide d'un modèle. L'effet d'une irradiation par ions légers sur la structure a également été étudié.

## Abstract

Molecular-beam epitaxy growth of MnPt/Pt (100) has been studied. The MnPt alloy, chemically-ordered with  $L1_0$  structure, has been elaborated by codeposition and by a multilayer method. The codeposition leads to a twinned structure with in-plane tetragonal axis. The multilayer method gives rise to a favoured out-of-plane orientation of the tetragonal axis. The magnetic structure of each of the two deposited alloys has been characterized. Exchange-coupled Fe/MnPt and FeNi/MnPt bilayers have been elaborated. Due to the competition between intrinsic anisotropies and exchange anisotropy, the angular behaviour of magnetic properties (coercive field and exchange bias) of the ferromagnetic layer shows a complex evolution and an induced anisotropy. A model of total energy has been used to interpret the experimental data. In-field magnetic-force microscopy study of the magnetization shows distinct reversal mechanisms according to the respective orientation of the field and anisotropies. At a low scale, anisotropy competition leads to the appearance of magnetic ripples. The latter have been observed and modelled. The effect of light ion irradiation on the structure has also been investigated.

## Resumo

Este trabalho concentra-se no crescimento por epitaxia por feixe molecular de camadas de MnPt/Pt (100) e na caracterização delas. MnPt, liga de estrutura  $L1_0$ , quimicamente ordenada, foi obtida por dois métodos. A codeposição de MnPt dá uma estrutura bivariada caracterizada por dois eixos de tetragonalidade no plano da camada. O segundo método foi baseado na deposição alternada de camadas puras de Mn e Pt, o que leva a uma estrutura monocristalina com um eixo de anisotropia perpendicular ao plano. O ordenamento químico e magnético dos dois tipos de camada foi estudado. Filmes de Fe/MnPt e FeNi/MnPt foram depositados. Dando sequência à competição entre as anisotropias e a polarização por intercâmbio, a dependência angular das propriedades magnéticas da camada ferromagnética mostra uma evolução complicada e uma anisotropia induzida. Um modelo de energia total foi desenvolvido no âmbito de interpretar os dados experimentais. Os mecanismos de mudança de magnetização foram revelados por uso de microscopia de força magnética sob campo. Em pequena escala, a competição entre anisotropias leva à ondulações da magnetização que foram observadas e modeladas. O efeito na estrutura de uma irradiação de íons leves também foi medida.